



# Analyse des mécanismes de recristallisation statique du tantale déformé à froid pour une modélisation en champ moyen

Christophe Kerisit

## ► To cite this version:

Christophe Kerisit. Analyse des mécanismes de recristallisation statique du tantale déformé à froid pour une modélisation en champ moyen. Autre. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2012. Français. NNT : 2012ENMP0087 . pastel-00873188

**HAL Id: pastel-00873188**

**<https://pastel.archives-ouvertes.fr/pastel-00873188>**

Submitted on 15 Oct 2013

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Ecole doctorale n° 364 : Sciences Fondamentales et Appliquées

**Doctorat ParisTech**

**T H È S E**

pour obtenir le grade de docteur délivré par

**l'École nationale supérieure des mines de Paris**

**Spécialité "Science et génie des matériaux "**

*présentée et soutenue publiquement par*

**Christophe KERISIT**

le 18 décembre 2012

**Analyse des mécanismes de recristallisation statique du tantale déformé  
à froid pour une modélisation en champ moyen**

Directeurs de thèse : **Nathalie BOZZOLO et Tony MONTESIN**

Co-encadrement de la thèse : **Roland LOGE**

**Jury**

**M. Frank MONTHEILLET**, Directeur de recherche, SMS, Mines de Saint-Etienne

**M. Thierry GROSDIDIER**, Professeur, LEM3, Université de Lorraine, Metz

**M. André PINEAU**, Professeur, Centre des Matériaux, Mines Paristech

**M. Hubert SCHAFF**, Directeur R&D, Aubert & Duval

**M. Tony MONTESIN**, Professeur, ICB, Université de Bourgogne

**Mme Nathalie BOZZOLO**, Maître assistant, CEMEF, Mines Paristech

**Mme Valérie LLORCA**, Docteur, chef de laboratoire, CEA/DAM Valduc

**M. Roland LOGE**, Chargé de recherche, CEMEF, Mines Paristech

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examineur

Examineur

Examineur

Examineur

Examineur

**MINES ParisTech**

**Centre de mise en forme des matériaux**

Rue Claude Daunesse, CS 10207, 06904 Sophia Antipolis cedex



---

## Remerciements

---

Je souhaiterais tout d'abord remercier le CEA DAM Valduc, la région Bourgogne ainsi que MINES ParisTech pour m'avoir permis de réaliser ce travail. Ce projet de recherche a également été soutenu par l'Agence Nationale pour la Recherche (ANR) en faisant partie intégrante du projet THERMIDE.

J'aimerais ensuite remercier mes encadrants, tant au CEMEF avec Roland Logé et Nathalie Bozzolo, qu'au CEA Valduc avec Valérie Llorca et Wilfried Geslin. Sans leurs compétences, leur passion pour la recherche permettant de répondre à des besoins industriels actuels et leur implication dans ce projet, mon travail n'aurait sans doute pas été le même. J'ai beaucoup appris à leurs côtés, autant d'un point de vue scientifique que personnel. Je leur en suis réellement reconnaissant.

Je remercie également les membres du jury d'avoir accepté de juger mon travail. Merci à Dr. Frank Montheillet et Prof. Thierry Grosdidier d'avoir été rapporteur. Merci à Prof. André Pineau d'avoir présidé ce jury et à Hubert Schaff d'avoir apporté son regard « industriel » sur les résultats que j'ai obtenus au cours de ce travail. Je remercie Prof. Tony Montesin qui m'a suivi durant ces trois ans, notamment lors des réunions du projet THERMIDE.

Merci à Suzanne Jacomet, Bernard Triger, Cyrille Colin, Gilbert Fiorrucci et à l'équipe MEA du CEMEF pour m'avoir formé aux différentes techniques de caractérisation des matériaux, et aidé dans la réalisation de toutes mes expériences. Merci à Eric Suzon, François Buy, José Farré, Rémy Besnard, Patrick Lointier ainsi que tout le Laboratoire de Déformation Plastique du CEA Valduc pour avoir suivi mon travail avec tant d'intérêt et pour avoir réalisé une partie des traitements thermiques nécessaires au bon déroulement de ce travail.

Merci également à toutes les personnes du groupe MSR du CEMEF pour leur sympathie et pour leur contribution, de près ou de loin, à ce travail. Merci à Oscar, Ke et Pierre pour la partie modélisation en champ moyen de la recristallisation. Je tenais également à remercier Andréa et Ana Laura.

Merci à Aurélien, François, Yann, Cyrielle, Théo, Seb, BenJ, Alice et Noémie pour ces trois années bien agréables sur la Côte d'Azur.

J'ai également une pensée pour ceux qui depuis 7 ans et le début de l'école d'ingénieur sont toujours à mes côtés même si nous avons pris des chemins différents. Merci à Dinouz, Poupou, Nico et Guillaume pour leur soutien et pour m'avoir permis de m'évader du monde de la thèse assez régulièrement. Vous avez aussi contribué à votre manière à ce travail.

Merci à ma famille de m'avoir soutenu sans forcément comprendre ce que je faisais. Merci de m'avoir donné la possibilité d'arriver jusque là.

Enfin, un énorme merci à Edwige d'avoir été là à mes côtés pour me soutenir, pour partager avec moi tous les moments de doute mais aussi de satisfaction. Merci de m'avoir mis dans les meilleures conditions pour la rédaction de ce document, d'avoir écouté mes réflexions sur les microstructures au petit-déjeuner... Merci pour tout.





# Table des matières

<b>TABLE DES MATIERES</b>	<b>5</b>
<b>INTRODUCTION GENERALE.</b>	<b>9</b>
<b>Contexte</b>	<b>10</b>
<b>I. Matériau d'étude : le tantale en tôle épaisse</b>	<b>10</b>
<b>II. Les évolutions microstructurales au cours d'un traitement thermique</b>	<b>13</b>
1. Restauration statique	13
2. Recristallisation statique discontinue	14
3. Croissance de grains	15
<b>III. Objectifs de l'étude</b>	<b>15</b>
<b>IV. Démarche</b>	<b>16</b>
<b>PREMIERE PARTIE.</b>	<b>17</b>
<b>MODELISATION EN CHAMP MOYEN DES EVOLUTIONS MICROSTRUCTURALES AU COURS D'UN TRAITEMENT THERMIQUE</b>	
<b>Introduction</b>	<b>18</b>
<b>I. Les différentes méthodes de modélisation de la recristallisation et de la croissance de grains</b>	<b>19</b>
1. L'approche originelle : modèle analytique Johnson-Mehl-Avrami-Kolmogorov (JMAK)	19
2. Les approches probabilistes	20
a. La méthode Monte Carlo	20
b. La méthode de l'automate cellulaire	21
3. Les méthodes basées sur un maillage de la microstructure	21
a. La méthode des vertex	21
b. Méthodes à Champ de phase & Level-Set	22
4. Résumé	23
<b>II. Principe de la modélisation en champ moyen à deux milieux homogènes équivalents</b>	<b>25</b>
1. Description de la microstructure initiale	25
a. Distribution de taille de grains 3D	26
b. Distribution de densités de dislocations	26
c. Construction de la microstructure représentative 3D	27
2. Représentation des deux milieux homogènes équivalents	27
3. Les équations d'évolution de base	28
a. Migration des joints de grains	28
b. Restauration	30
c. Germination	31
d. Interaction avec les milieux homogènes équivalents	32
4. Implémentation numérique du modèle en champ moyen en conditions anisothermes	36

a. Gestion du pas de temps	36
b. Algorithme	37
5. Récapitulatif et méthodes de détermination des paramètres du modèle	37
a. Densité de dislocations de l'état initial	38
b. Mobilité des joints de grains	38
c. Densité de dislocations critique	39
<b>Synthèse</b>	<b>40</b>
 <b>DEUXIEME PARTIE.</b>	 <b>41</b>
 <b>LOI DE COMPORTEMENT DU TANTALE PUR ET DESCRIPTION DE L'ETAT DEFORME</b>	
<b>Introduction</b>	<b>42</b>
<b>I. Loi de comportement du tantale pur basée sur une densité de dislocations</b>	<b>42</b>
1. Le comportement plastique du tantale pur	42
a. Contrainte d'écoulement à la transition élasto-plastique	42
b. Ecrouissage du tantale	45
2. Modélisation du comportement basée sur une densité de dislocations	46
a. Description du modèle	46
b. Détermination des paramètres du modèle	49
<b>II. Evaluation de la densité de dislocations équivalente par mesure de microdureté Vickers</b>	<b>57</b>
1. La microdureté Vickers du tantale pur recristallisé	58
a. Calcul de la dureté	59
b. Cinématique de l'essai de dureté	59
c. Nomenclature	60
d. Influence du temps de maintien sur la microdureté du tantale pur recristallisé	60
2. Détermination de la relation dureté Vickers-densité de dislocations équivalente	61
<b>III. Description des microstructures de déformation dans le tantale</b>	<b>63</b>
1. Anisotropie de comportement plastique	63
2. Hétérogénéités des microstructures intragranulaires	65
3. Evolution de la microstructure aux grandes déformations	69
<b>Synthèse</b>	<b>72</b>
 <b>TROISIEME PARTIE.</b>	 <b>75</b>
 <b>CARACTERISATION DE LA RECRISTALLISATION STATIQUE ET DE LA CROISSANCE DE GRAINS DANS LE TANTALE PUR</b>	
<b>Introduction</b>	<b>76</b>
<b>I. La restauration, la recristallisation statique et la croissance de grains du tantale dans la littérature</b>	<b>76</b>
1. Restauration statique	76

2.	Recristallisation statique discontinue	78
a.	Influence des paramètres thermomécaniques du procédé	79
b.	La recristallisation à l'échelle granulaire	82
c.	Texture de recristallisation	84
3.	Croissance de grains	85
4.	Bilan	87
<b>II.</b>	<b>Etude de la recristallisation du tantale et identification d'une loi de restauration</b>	<b>88</b>
1.	Identification des paramètres de la loi de restauration du tantale	89
2.	Observation et caractérisation de la recristallisation statique : traitements thermiques in situ couplés à la technique EBSD	90
a.	Dispositif et procédure expérimentale	91
b.	Analyse des microstructures de recuit par EBSD	92
c.	Germination	93
d.	Croissance des grains recristallisés dans le matériau déformé	95
e.	Croissance de grains après la recristallisation	97
f.	Estimation de la mobilité des joints de grains à 750°C	98
g.	Observation de la recristallisation : surface vs volume	99
3.	Déclenchement de la recristallisation et densité de dislocations équivalente critique	101
a.	Caractérisation du gradient de densité de dislocations après déformation	103
b.	Détermination de la courbe de densité de dislocations critique	105
4.	Cinétiques de recristallisation du tantale pur et croissance de grains	109
a.	Cinétique de recristallisation de référence à 1000°C	110
b.	Influence de la température de recuit	111
c.	Influence de la densité de dislocations initiale	112
d.	Effet de la quantité de déformation	114
	<b>Synthèse</b>	<b>116</b>
	<b>QUATRIEME PARTIE.</b>	<b>119</b>
	<b>MODELISATION DES EVOLUTIONS MICROSTRUCTURALES DU TANTALE AU COURS D'UN TRAITEMENT THERMIQUE</b>	
	<b>Introduction</b>	<b>120</b>
<b>I.</b>	<b>Description des microstructures initiales</b>	<b>120</b>
1.	Microstructure initiale pour la croissance de grains	120
2.	Microstructures initiales pour la recristallisation	122
a.	Distribution de densités de dislocations	123
b.	Distribution de tailles de grains	124
<b>II.</b>	<b>Simulation de traitements thermiques</b>	<b>126</b>
1.	Etude paramétrique du modèle de recristallisation	127
2.	Identification des paramètres du modèle de recristallisation sur une microstructure proche des hypothèses de la modélisation	129
a.	Identification de la mobilité aux faibles vitesses de migration à 1000°C	129
b.	Identification des autres paramètres à 1000°C	130
c.	Effet de la température sur les paramètres du modèle - Identification à 1100°C	134

3. Réponse du modèle au type de microstructure initiale	136
a. Simulation d'un traitement thermique à 1000°C sur la microstructure 3	136
b. Simulation d'un traitement thermique à 1000°C sur la microstructure 2	137
<b>III. Perspective d'amélioration de l'identification des paramètres et du modèle</b>	<b>139</b>
1. Amélioration de l'identification des paramètres du modèle	139
2. Enrichissement de la base de données expérimentale	140
3. Perspectives d'amélioration du modèle de recristallisation statique	140
<b>Synthèse</b>	<b>142</b>
<b>CONCLUSION.</b>	<b>145</b>
<b>Synthèse</b>	<b>146</b>
<b>Perspectives</b>	<b>149</b>
<b>ANNEXES.</b>	<b>153</b>
<b>A1. Géométrie des éprouvettes utilisées lors des essais mécaniques</b>	<b>154</b>
<b>A2. Fichier matériau FORGE® du tantale pur pour la loi de comportement basée sur la densité de dislocations</b>	<b>156</b>
<b>A3. Protocole de préparation des échantillons de tantale pur pour une observation en EBSD</b>	<b>157</b>
<b>A4. Complément de l'étude expérimentale de mise en œuvre de l'indentation Vickers sur tantale pur recristallisé</b>	<b>158</b>
<b>A5. Simulation de l'essai d'indentation Vickers</b>	<b>160</b>
<b>A6. Analyse quantitative des désorientations intragranulaires à partir des données EBSD</b>	<b>171</b>
<b>A7. Revue bibliographique des différents systèmes de chauffage <i>in situ</i></b>	<b>172</b>
<b>A8. Méthode de mesure de la fraction recristallisée à partir de données EBSD</b>	<b>173</b>
<b>A9. Optimisation de la géométrie de l'essai double cône par simulation numérique</b>	<b>176</b>
<b>REFERENCES.</b>	<b>181</b>

# **INTRODUCTION GENERALE.**

## CONTEXTE

---

La mise au point d'une gamme de fabrication et la garantie des propriétés en service sont des enjeux majeurs de l'industrie métallurgique. La connaissance de la microstructure en chaque point d'une pièce et tout au long de sa mise en forme permet de maîtriser les propriétés mécaniques finales. Pour des pièces de grandes séries réalisées dans un matériau commun, il est assez aisé de prélever des échantillons au cours du procédé pour connaître l'évolution de la microstructure. Il est ainsi possible, expérimentalement, d'optimiser le procédé et la pièce finale. Cela nécessite de nombreux essais et un savoir-faire qui demandent à la fois du temps et des moyens matériels et financiers. Pour des pièces de plus petite série, conçues dans des matériaux onéreux, il est plus difficile, voire impossible, de sacrifier une pièce à chaque étape de fabrication. Disposer de moyens numériques pour prédire la microstructure tout au long d'un procédé de fabrication est donc crucial pour connaître et optimiser les propriétés de la pièce finale, ainsi que pour réduire l'impact économique de la mise au point d'une gamme de mise en forme.

Le travail réalisé durant cette thèse s'inscrit dans la cadre de la prédiction par simulation numérique de la microstructure au cours de la gamme de fabrication d'une pièce en tantale pur. La gamme de fabrication liée à ce travail est soumise à confidentialité. Le tantale, par sa grande ductilité à température ambiante, va permettre de réaliser des pièces de géométrie complexe en minimisant les risques de rupture. Les travaux présentés font directement suite aux travaux de thèse de (Houillon 2009).

### I. MATERIAU D'ETUDE : LE TANTALE EN TOLE EPAISSE

---

Le tantale est un matériau rare de structure cristalline cubique centrée avec un paramètre de maille égal à  $3,3 \times 10^{-10}$  m. Il possède un haut point de fusion (2996 °C) et une forte densité ( $16650 \text{ kg.m}^{-3}$ ).

Comme pour tous les métaux, la déformation plastique à froid du tantale est due principalement au mouvement des dislocations sur des plans de glissement spécifiques à la structure cristalline. Pour la structure cubique centrée, il y a 3 familles de systèmes de glissement<sup>1</sup>  $\{110\}\langle 111 \rangle$ ,  $\{112\}\langle 111 \rangle$  et  $\{123\}\langle 111 \rangle$  pour un total de 48 systèmes. Le vecteur de Burgers est égal à  $\frac{1}{2}\langle 111 \rangle$  et a pour norme  $2,86 \times 10^{-10}$  m. Le tantale est très ductile à température ambiante. Lorsque la température augmente, les éléments comme l'hydrogène (à partir de 200°C), l'oxygène (à partir de 300°C), l'azote (à partir de 1100°C) ou le carbone (à partir de 1200°C) diffusent dans le tantale. La présence de ces atomes dans la maille cristalline fait chuter de manière notable sa ductilité tout en augmentant sa résistance. C'est pourquoi il est nécessaire d'effectuer les traitements thermiques dans un four sous vide secondaire.

Dans cette étude, le matériau initial se présente sous la forme d'une tôle épaisse en tantale de haute pureté (> 99,95%). Une série de mesures de microdureté Vickers a été réalisée dans un plan contenant la direction normale à la tôle et donne une valeur de  $91 \pm 2 \text{ HV0,3}$  (dans les conditions de la norme ISO 6507-1 avec un temps de maintien de 15 secondes).

---

<sup>1</sup> Un système de glissement est défini par un plan de glissement et une direction de glissement.

Une analyse EBSD de la microstructure (figure i-1) a été effectuée sur le même plan que les mesures de microdureté. La tôle initiale présente une structure de grains assez grossière avec un diamètre moyen en nombre de  $183\ \mu\text{m}$  et en aire de  $390\ \mu\text{m}$ . Il est important de noter que malgré une zone d'analyse assez grande, le nombre de grains dans cette cartographie est faible ( $\approx 150$  grains). On pressent alors que pour obtenir des données statistiquement représentatives il serait nécessaire d'analyser de très grandes zones, le problème étant d'avoir accès à de grandes zones déformées de manière homogène.

La présence de joints de grains particuliers est un élément remarquable de cette microstructure. Il existe une proportion non négligeable de joints ayant une désorientation de  $60^\circ$  autour de l'axe  $\langle 111 \rangle$ , joints que l'on peut apparenter à la configuration classique des macles dans un matériau de structure cubique face centrée. La forme et la configuration de ces joints de grains particuliers laisse penser à des macles de recuit qui se forment pendant la croissance de grains. Ce type de macles de recuit a déjà pu être observé dans d'autres matériaux de structure cubique centrée comme le fer (Simonsen 1960; Viltange 1975) ou le niobium (Wasilewski 1966). Dans la suite de cette étude, le caractère particulier de ces macles de recuit ne sera pas pris en compte.

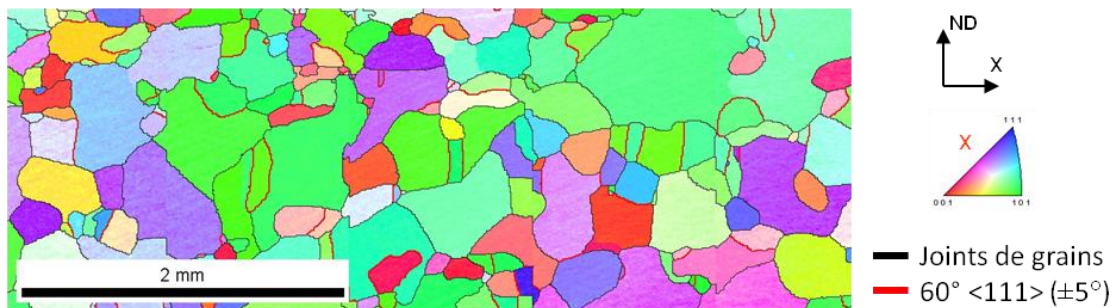
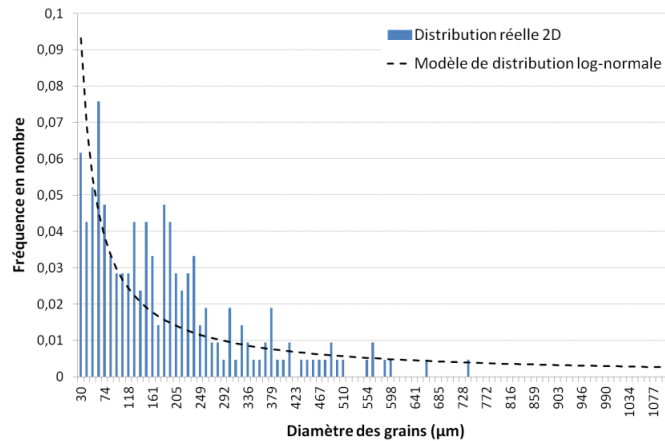


Figure i-1. Microstructure de la tôle initiale révélée par EBSD

La figure i-2 montre la distribution réelle de tailles de grains en nombre extraite de la cartographie EBSD de la figure i-1. A cette distribution est superposé un modèle de distribution log-normale ayant la même moyenne et le même écart-type que la distribution réelle. Premièrement, on voit que les plus gros grains peuvent avoir une taille millimétrique. Deuxièmement, compte tenu de la statistique de cette cartographie, on peut estimer que la distribution réelle se rapproche d'une distribution log-normale.





**Figure i-2. Distribution réelle de taille des grains (diamètre) de la tôle initiale et comparaison avec une distribution log-normale**

Il ressort de cette observation que la microstructure de la tôle initiale est relativement hétérogène et présente des grains de taille millimétrique. Ce matériau initial va largement influencer la suite de l'étude car il sera notamment plus susceptible de créer des hétérogénéités de déformation propres à chaque échantillon et ainsi de générer des comportements spécifiques au cours de la recristallisation. Cette microstructure initiale peut donc générer une variabilité des résultats obtenus dans ces travaux, qu'il est difficile de quantifier.

**Remarque**

Dans cette étude, les résultats de travaux précédents (Houillon 2009) seront également utilisés et réexploités. Ces résultats ont été obtenus à partir d'un matériau initial légèrement différent. Ce matériau initial présentait une dureté Vickers de  $82 \pm 2$  HV0,3 et une taille de grains initiale moyenne en nombre de 48 μm (distribution de type log-normale).

Pour obtenir la pièce souhaitée, la tôle initiale va subir plusieurs étapes de déformation au cours desquelles le matériau va stocker de l'énergie sous forme de dislocations. Il sera donc de plus en plus difficile de déformer la tôle sans risque de rupture. Des étapes de traitement thermique intermédiaire permettent de réduire l'énergie stockée dans le matériau par des modifications microstructurales, et ainsi de rétablir les propriétés mécaniques initiales ou d'ajuster ses propriétés pour arriver à celles souhaitées. Un traitement thermique est défini par cinq paramètres :

- La vitesse de chauffage,
- La température du palier de traitement,
- La durée du palier de traitement,
- La vitesse de refroidissement,
- L'atmosphère dans laquelle est réalisé le traitement (vide secondaire pour le tantale).

Ces paramètres ainsi que les conditions de déformation vont déterminer les évolutions microstructurales durant le traitement thermique.

## II. LES EVOLUTIONS MICROSTRUCTURALES AU COURS D'UN TRAITEMENT THERMIQUE

Au cours d'un traitement thermique, on peut observer trois phénomènes que sont la restauration, la recristallisation et la croissance de grains. Par opposition aux phénomènes ayant lieu au cours de la déformation et qualifiés de « dynamiques », les mécanismes décrits ici sont dits « statiques ».

### 1. Restauration statique

La restauration statique consiste en une annihilation partielle des dislocations et en un réarrangement de celles-ci dans une structure en cellules. Cette structure est plus favorable énergétiquement car elle minimise l'énergie d'interaction entre dislocations. La restauration statique peut comporter différentes étapes (figure i-3) pour transformer une microstructure avec des dislocations enchevêtrées et distribuées uniformément en volume en une microstructure composée de cellules délimitées par des parois de dislocations. Le développement de la restauration va dépendre de la nature du matériau mais également de sa composition et de la température de traitement thermique. Elle va également être influencée par la microstructure issue de la déformation laquelle peut déjà avoir débuté le processus de restauration en conditions dynamiques. Le tantale est un matériau avec une énergie de défaut d'empilement assez élevée ( $41,4 \text{ mJ.m}^{-2}$  (Wasilewski 1967)) qui va faciliter le mécanisme de restauration, et cela dès les étapes de déformation. Le matériau est donc sujet à la fois à de la restauration dynamique et à de la restauration statique.

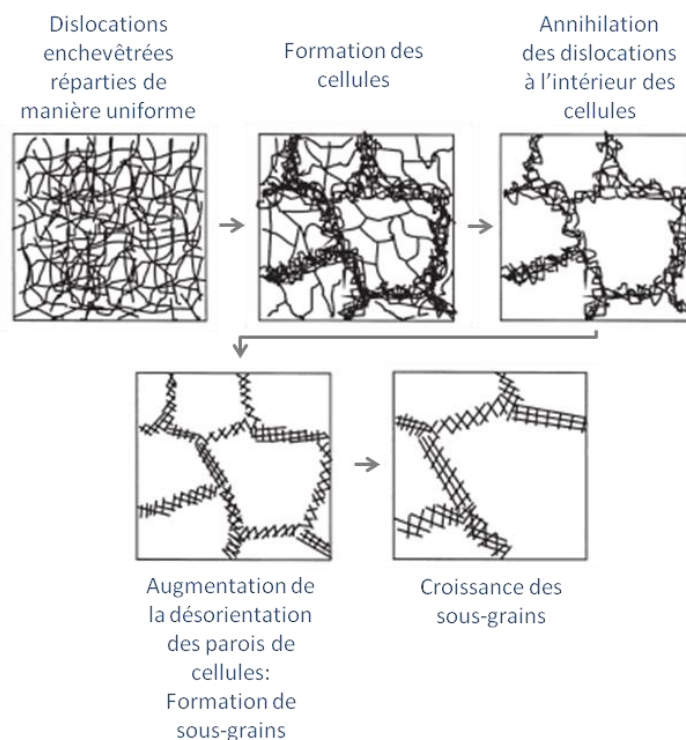


Figure i-3. Transformations de la microstructure au cours de la restauration statique (images extraites de (Humphreys & Hatherly 2004))

## 2. Recristallisation statique discontinue

La recristallisation discontinue est un processus de germination/croissance, c'est-à-dire que de nouveaux grains libres de dislocations vont apparaître et croître afin de régénérer la microstructure.

Comme l'évoque Hutchinson (B. Hutchinson 1992), germination et croissance ne sont pas deux mécanismes réellement distincts. Un germe correspond à un petit élément de volume dans la matière qui a atteint les conditions pour croître dans la matrice déformée. Dans des conditions de température donnée, un germe est thermodynamiquement stable, c'est-à-dire que la variation d'énergie libre volumique  $\Delta G_V$  par rapport à son environnement doit être négative et supérieure en valeur absolue à la variation d'énergie libre de son interface  $\Delta G_S$ . Cette condition thermodynamique dépend de la taille du germe potentiel ainsi que de la différence d'énergie stockée (densité de dislocations) entre le germe et son voisinage. De cette manière, la force motrice pour la migration de l'interface du germe est positive ce qui rend sa croissance possible. La deuxième condition pour qu'un germe puisse croître est que sa frontière doit avoir une mobilité importante. La mobilité de la frontière va fortement dépendre de la différence d'orientation de part et d'autre de celle-ci. L'angle de désorientation critique à partir duquel on peut considérer que la frontière sera suffisamment mobile est aux alentours de  $15^\circ$ . Si la frontière du germe n'a pas atteint cette désorientation limite lors de la déformation, il peut exister au début du traitement thermique un temps pendant lequel la structure va se réorganiser par restauration pour atteindre cette valeur de désorientation et diminuer la densité de dislocations interne au germe (et donc son énergie interne par rapport au voisinage). Ce temps est interprété comme un "temps d'incubation" pour la germination.

La germination est par nature un régime transitoire. Dans la microstructure déformée, il existe de petits volumes de matière présentant les caractéristiques requises pour devenir des germes appelés « embryons ». Dès que toutes les conditions sont réunies, l'embryon devient un germe puis immédiatement un grain recristallisé qui va croître dans la matrice déformée. Un grain recristallisé contient très peu de dislocations. La force motrice de sa croissance est la consommation de l'énergie stockée dans la matrice déformée principalement sous forme de dislocations. Les différentes étapes de la recristallisation statique discontinue sont schématisées sur la figure i-4.

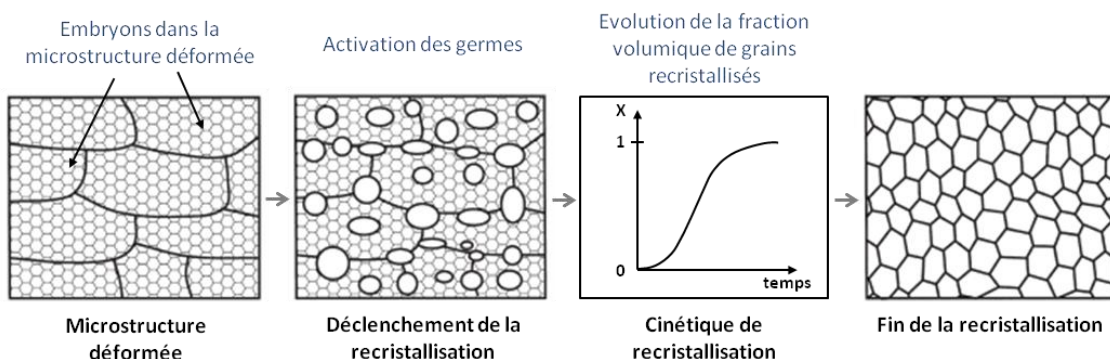


Figure i-4. Schématisation du phénomène de recristallisation statique discontinue (images extraites de (Humphreys & Hatherly 2004))

La germination va influencer de manière significative la microstructure de fin de recristallisation. En effet, plus la densité de germes est grande et plus les nouveaux grains recristallisés sont nombreux et entrent rapidement en contact en ayant consommé l'énergie de la matrice déformée. La taille de grains recristallisés est ainsi plus faible que dans le cas où la densité de germes est faible.

La maîtrise du phénomène de recristallisation passe par la connaissance de l'effet des paramètres des procédés (conditions de déformation avant le traitement thermique, température et temps de traitement) sur les observables permettant de décrire la recristallisation: fraction volumique recristallisée et taille moyenne des grains recristallisés.

### ***3. Croissance de grains***

Une fois la microstructure entièrement recristallisée, celle-ci continue d'évoluer. Les grains continuent à grossir afin de minimiser la surface totale de joints de grains. Cette phase appelée croissance de grains a une cinétique plus lente que la recristallisation. La force motrice pour la migration des joints de grains est liée à la courbure des joints de grains. Les grains les plus gros vont donc s'étendre aux dépens des plus petits grains, les premiers ayant généralement des formes concaves, alors que les seconds auront plutôt des formes convexes.

## **III. OBJECTIFS DE L'ETUDE**

---

Le travail réalisé durant cette thèse se concentre sur la phase de traitement thermique pouvant intervenir dans la gamme de fabrication d'une pièce en tantale pur. L'objectif est double :

- 1/ Approfondir les connaissances sur les mécanismes d'évolution microstructurale dans le tantale au cours d'un traitement thermique. Cela implique principalement la recristallisation statique discontinue, et, dans une moindre mesure, la restauration et la croissance de grains.
- 2/ Prédire, pour une microstructure initiale donnée, la microstructure obtenue à l'issue d'un traitement thermique.

## IV. DEMARCHE

---

Afin de prédire les microstructures en fin de traitements thermiques, nous avons choisi d'utiliser un modèle de recristallisation en champ moyen développé au CEMEF (Mines Paris-Tech).

1. Le modèle en champ moyen sera décrit dans son principe général dans la première partie de ce manuscrit. Les différents travaux réalisés au cours de cette thèse se sont articulés autour du modèle et se sont concentrés sur les moyens d'obtenir les données nécessaires à la simulation d'un traitement thermique.
2. La deuxième partie sera consacrée à la description de l'état déformé à travers une densité de dislocations équivalente qui sera évaluée par un essai de microdureté Vickers. Nous verrons également quel type de microstructure développe le tantale au cours de la déformation.
3. Après la description de l'état déformé, nous nous intéresserons à la caractérisation des évolutions microstructurales dans le tantale au cours d'un traitement thermique. L'attention sera portée particulièrement sur le déclenchement et la progression de la recristallisation en fonction des conditions de déformation et de traitement thermique.
4. La dernière partie sera focalisée sur l'adaptation et l'identification des paramètres du modèle de recristallisation en champ moyen dans le cas du tantale et à la confrontation des données obtenues en simulation avec les données expérimentales.
5. Enfin, nous conclurons sur les différents aspects abordés au cours de cette thèse pour dégager de ce travail les principales avancées ainsi que les perspectives d'amélioration concernant la prédiction des microstructures au cours d'un traitement thermique et plus largement d'une gamme de mise en forme.

## **PREMIERE PARTIE.**

### **Modélisation en champ moyen des évolutions microstructurales au cours d'un traitement thermique**

## INTRODUCTION

---

La prédiction des évolutions microstructurales au cours d'une gamme de mise en forme nécessite de modéliser les phénomènes susceptibles de se produire à cause de la déformation plastique, de l'énergie apportée ou retirée lors d'un traitement thermique (chauffage et refroidissement) ou encore à cause d'une combinaison de ces différents événements. Lors d'un traitement thermique d'une pièce métallique, les phénomènes pouvant avoir lieu sont la restauration, la recristallisation statique et la croissance de grains.

La modélisation des évolutions microstructurales que sont la recristallisation et la croissance de grains peut être utilisée à des fins différentes suivant que l'on se place d'un point de vue industriel (définition de gammes) ou d'un point de vue plus orienté vers la compréhension fine des phénomènes. Ces deux visions n'ont pas les mêmes attentes en terme de simulation des évolutions microstructurales, ce qui va conditionner les modèles utilisés dans un cas ou dans l'autre.

D'un point de vue industriel, simuler les évolutions microstructurales implique de pouvoir prédire assez rapidement la microstructure de la pièce après traitement thermique, connaissant la microstructure de la pièce déformée avant le recuit. Cet état déformé peut être déterminé de deux manières, soit par une caractérisation expérimentale de la microstructure après déformation, soit par simulation de la gamme de mise en forme. Les pièces, généralement de grande taille, ayant subi une déformation hétérogène, la microstructure de l'état déformé sera décrite par des « zones quasi-homogènes », avec une taille de grains moyenne et une quantité de déformation affectées à chaque zone. L'objectif est globalement d'obtenir, pour chaque zone et en fonction du recuit, la taille de grains, la fraction recristallisée ou encore la texture. Les propriétés (principalement mécaniques) de la pièce dépendant en grande partie de ces paramètres microstructuraux, la modélisation permet ensuite d'adapter les conditions de déformation et/ou de traitement thermique afin d'obtenir les propriétés souhaitées.

Du point de vue de la compréhension et de la description précise des phénomènes de recristallisation et de croissance de grains, l'objectif sera de décrire de manière explicite la microstructure à l'échelle du grain, ou de l'agrégat de grains, afin de rendre compte des hétérogénéités liées à la déformation ou à la nature des joints de grains. Ces modélisations permettent de bien retranscrire la réalité des évolutions microstructurales au cours d'un traitement thermique mais sont assez coûteuses en temps de calcul. Une modélisation à cette échelle peut valider ou invalider certaines hypothèses faites dans des modèles à moyenne ou grande échelle. Les modèles en « champ complet » sont ainsi intéressants pour étudier l'effet de certaines hypothèses sur la recristallisation ou de compléter certains points d'études correspondant à une caractérisation expérimentale qui est difficile ou impossible.

Le premier point de ce chapitre sera consacré à un rapide état de l'art sur les méthodes de modélisation aujourd'hui disponibles et utilisées pour représenter la restauration, la recristallisation statique et la croissance de grains. Les grands types de modélisation seront décrits principalement en termes d'avantages et d'inconvénients et ce panorama permettra ainsi de positionner la modélisation en champ moyen vis-à-vis des attentes formulées. Le modèle en champ moyen à deux milieux homogènes équivalents fera l'objet du second point et sera décrit plus en détail. Le dernier point de ce chapitre s'attachera à proposer une stratégie d'identification des paramètres du modèle en champ moyen.

## I. LES DIFFERENTES METHODES DE MODELISATION DE LA RECRISTALLISATION ET DE LA CROISSANCE DE GRAINS

Il existe principalement 3 grandes familles en dehors des modèles en champ moyen, de modèles pour la recristallisation statique discontinue et la croissance de grains.

### 1. L'approche originelle : modèle analytique Johnson-Mehl-Avrami-Kolmogorov (JMAK)

La première approche utilisée pour décrire et quantifier les phénomènes basés sur le processus de germination/croissance a été développée à la fin des années 1930 (W. A. Johnson & Mehl 1939; Avrami 1939; Kolmogorov 1937). Ce modèle analytique et plutôt phénoménologique est connu sous le nom de modèle de Johnson-Mehl-Avrami-Kolmogorov (JMAK). Il est largement développé dans la littérature et notamment dans (Humphreys & Hatherly 2004).

Le modèle JMAK est établi dans des conditions isothermes et suppose un état déformé homogène. Au moment où la recristallisation se déclenche, les germes supposés sphériques ou non (facteur de forme  $f$ ) apparaissent à une vitesse de germination  $\dot{N}$  et croissent dans le matériau à une vitesse  $\dot{G}$ . Ainsi on peut suivre l'évolution de la fraction volumique recristallisée  $X_V$  :

$$X_V(t) = 1 - \exp(-Bt^n) \quad \text{Equation 1.1}$$

Où  $B$  est une constante dépendant de  $f$ ,  $\dot{N}$  et de  $\dot{G}$  (équation 1.2), et  $n$  est l'exposant d'Avrami.

$$B = \frac{f\dot{N}\dot{G}^3}{4} \quad \text{Equation 1.2}$$

Cette approche très simple considère que les vitesses de germination et de croissance sont constantes au cours de la recristallisation. Des améliorations ont été apportées au modèle en tentant de considérer une germination variable dans le temps, par exemple en « sites saturés » (Avrami 1939), c'est-à-dire avec une germination homogène mais immédiate (tous les germes commencent à croître dès l'instant initial). Cette modification du modèle initial montre que la loi de germination affecte l'exposant d'Avrami  $n$  (tableau 1-1). On montre aussi que la dimensionnalité de la croissance joue sur la valeur de cet exposant.

**Tableau 1-1. Valeurs typiques de l'exposant d'Avrami  $n$  en fonction des conditions de germination et de la dimension de croissance considérée** (Humphreys & Hatherly 2004)

	Germination en sites saturés	Germination continue constante
3D	3	4
2D	2	3
1D	1	2

La modélisation analytique de type JMAK est simple et permet de rendre compte rapidement d'une cinétique de recristallisation en conditions isothermes pour une microstructure simple et homogène. Cette approche ne considère pas la taille de grains ou encore la texture. La germination est aléatoirement distribuée en volume et ne rend pas compte de sites préférentiels potentiels pour l'apparition des nouveaux grains.



## 2. Les approches probabilistes

L'effort d'amélioration des modèles de recristallisation et de croissance de grains a principalement été porté sur la prise en compte des hétérogénéités de la microstructure. Ainsi, des méthodes décrivant la microstructure en 2D comme en 3D se sont développées (A D Rollett 1997).

Les méthodes probabilistes de type Monte Carlo et Automate Cellulaire se basent sur une description (2D ou 3D) de la microstructure en grille régulière. Cette grille est composée de domaines géométriques d'orientation cristallographique donnée appelés « cellules ». Deux cellules sont considérées comme étant dans le même grain si leur désorientation ne dépasse pas la valeur seuil définie pour les joints de grains (A D Rollett 1997). Ainsi, un grain est décrit par un ensemble de cellules.

### A. LA METHODE MONTE CARLO

---

Cette méthode a été appliquée dans un grand nombre d'études pour modéliser la recristallisation et la croissance de grains depuis leur développement dans les années 1980 (Srolovitz et al. 1983; Srolovitz et al. 1986; Srolovitz et al. 1988) jusqu'à plus récemment (Ivasishin et al. 2006; Chun et al. 2006; Montano-Zuniga et al. 2010).

Chaque cellule de la grille régulière discrétisant la microstructure va évoluer à chaque pas de la simulation (Monte Carlo Step, MCS) suivant des règles probabilistes basées sur une minimisation de l'énergie de la cellule par rapport à son environnement (A D Rollett 1997). Les évolutions topologiques sont ainsi bien captées par le fait que les interfaces sont représentées par les faces des cellules. La représentation en grille régulière ainsi que l'application de règles simples à chaque pas de simulation, rend les méthodes de type Monte Carlo efficaces en termes de temps de calcul. Cependant, dans un souci de représentativité statistique, un nombre important de simulations doit être réalisé afin de compenser la nature probabiliste de la méthode Monte Carlo.

Dans ce type de méthode, la germination en « sites saturés » peut simplement être réalisée en introduisant dans la microstructure initiale un certain nombre de germes aléatoirement distribués (A D Rollett 1997). La germination continue est simulée en introduisant des germes à intervalles de temps réguliers. La germination peut également être localisée au niveau des joints de grains et ainsi prendre en compte les hétérogénéités d'énergie stockée dans la microstructure déformée (Ivasishin et al. 2006). Dans des développements plus récents (Montano-Zuniga et al. 2010; Holm et al. 2003), la germination est modélisée par une croissance anormale de sous-grains.

La méthode Monte Carlo présente deux principaux inconvénients. Le premier est lié au fait que l'évolution microstructurale se fait en fonction d'un pas de simulation (MCS). Il n'y a donc pas d'échelle de temps, ce qui rend difficile la comparaison avec les données expérimentales (A D Rollett 1997). Deuxièmement, les approches standard de type Monte Carlo ne permettent pas de rendre compte du caractère linéaire de la relation entre la vitesse de migration des joints de grains et la force motrice dans le cas de la recristallisation. Cette relation linéaire est uniquement vérifiée lors des simulations de croissance de grains (Ivasishin et al. 2006).

### *B. LA METHODE DE L'AUTOMATE CELLULAIRE*

---

La méthode de l'automate cellulaire est également une méthode probabiliste mais elle s'appuie cette fois sur des règles représentant physiquement le phénomène considéré pour faire évoluer l'état des cellules représentant la microstructure (Raabe 1999). Le front de recristallisation est considéré comme irréversible et induit donc qu'une cellule non recristallisée va changer d'état si elle possède au moins une des cellules voisines dans l'état recristallisé. L'automate cellulaire est donc très efficace pour décrire l'évolution de la fraction recristallisée. Cependant, par cette méthode standard il n'est pas possible de prendre en compte la force motrice de migration des joints de grains due à leur courbure et à leur énergie (Anthony D Rollett & Raabe 2001). Des méthodes améliorées essaient cependant de prendre en compte cet effet de la courbure (Kugler & Turk 2006; Raghavan & Sahay 2009) et peuvent ainsi simuler en plus de la recristallisation, la croissance de grains.

Dans les méthodes de l'automate cellulaire standard, la germination est déclenchée au début de la simulation (sites saturés). Un certain nombre de cellules, distribuées aléatoirement, sont déclarées comme recristallisées (A D Rollett 1997). Des évolutions de la méthode permettent de simuler la germination continue et de la localiser au niveau des joints de grains (Kugler & Turk 2006; Goetz & Seetharaman 1998). De même que pour la méthode Monte Carlo, une seule simulation en automate cellulaire ne suffit pas à obtenir un résultat statistiquement représentatif.

Des améliorations notables ont été réalisées sur les méthodes Monte Carlo et de l'automate cellulaire afin de représenter tous les phénomènes ayant lieu pendant un traitement thermique. Une des voies d'amélioration étant même de combiner les deux méthodes pour en atténuer leurs inconvénients (Anthony D Rollett & Raabe 2001).

## ***3. Les méthodes basées sur un maillage de la microstructure***

La dernière grande famille de méthodes de modélisation de la recristallisation statique et de la croissance de grains repose sur une description de la microstructure par un maillage.

### *A. LA METHODE DES VERTEX*

---

Dans les méthodes dites « Vertex », les interfaces entre grains sont décrites par des nœuds placés aux points triples en 2D ou aux points quadruples en 3D et sur les joints de grains entre ces points (figure 1-1). L'idée de la méthode est de suivre les évolutions microstructurales par le suivi des mouvements de ces interfaces (Miodownik 2002; Le et al. 1999). Ces modèles permettent surtout de représenter la croissance de grains en 2D et 3D (Maurice & Humphreys 1998; Le et al. 1999; Weygand et al. 2001). Les méthodes Vertex ont ensuite été étendues à la modélisation de la recristallisation statique discontinue (Piękoś et al. 2008). Ces méthodes posent énormément de soucis lorsqu'il s'agit de gérer des événements topologiques tels que l'apparition ou la disparition d'un grain. La gestion des nœuds s'avère être un problème gérable en 2D mais très compliqué en 3D (Weygand et al. 2001; Syha & Weygand 2010).

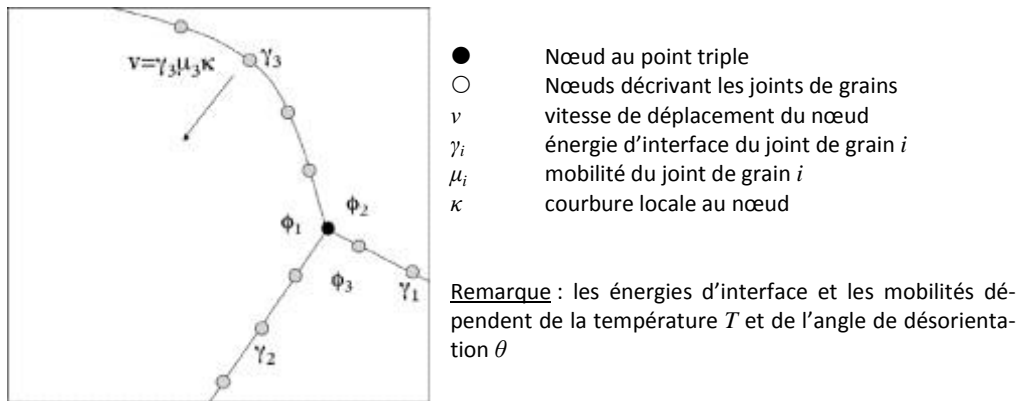


Figure 1-1. Description d'un point triple et des joints de grains avoisinants par un modèle Vertex en 2D (Miodownik 2002)

## B. MÉTHODES À CHAMP DE PHASE & LEVEL-SET

Les deux dernières méthodes présentées ici sont également utilisées pour modéliser la recristallisation statique discontinue et la croissance de grains (Zhao et al. 1996; Fan & L. Q. Chen 1997; Bernacki et al. 2009; Bernacki et al. 2011). Elles ont pour point commun de décrire la microstructure de manière implicite et de définir les interfaces par des fonctions.

Dans la méthode à champ de phase, chaque grain est décrit par un champ de densité d'énergie libre et chaque joint de grains est décrit par une interface diffuse entre ces champs dans laquelle une fonction va varier entre 0 et 1 pour réaliser la transition entre chaque grain (Fan & L. Q. Chen 1997). Le joint de grains à proprement parler est défini comme une isovaleur de cette fonction de transition. La migration des joints de grains est pilotée simplement par la différence de densité d'énergie libre de part et d'autre du joint de grains (Miodownik 2002) et les événements topologiques sont traités de manière naturelle par minimisation d'énergie (Miodownik 2002; Bernacki et al. 2009). La résolution des équations se fait en discrétisant à la fois l'espace (maillage) et le temps. Une des difficultés de cette méthode réside dans la bonne description des densités d'énergie libre afin qu'elles soient représentatives de la réalité physique du problème posé. De plus, cette méthode est pour l'instant très coûteuse en temps de calcul et a donc été peu développée en 3D (Moelans et al. 2009). Enfin, la modélisation de la germination reste difficile à mettre en place malgré des tentatives récentes (Takaki & Tomita 2010).

De son côté, la méthode Level-Set se base sur un maillage éléments finis (figure 1-2) (Bernacki et al. 2009). En chaque noeud du maillage sont stockées des variables d'état permettant de décrire la microstructure en termes d'orientation cristallographique, d'énergie stockée, etc. Les interfaces sont définies par une fonction distance par rapport au joint de grains (Zhao et al. 1996). Un joint de grains correspond à une valeur nulle de cette fonction distance. Cette méthode a été employée afin de modéliser la recristallisation primaire en 2D et en 3D (Bernacki et al. 2009) avec différents types de germination en fonction du cas que l'on souhaite étudier. Le problème de la croissance de grains a été traité plus tard (Bernacki et al. 2011), permettant ainsi de modéliser entièrement les étapes successives de recristallisation et croissance de grains ayant lieu pendant un traitement thermique. Un des points demandant beaucoup d'attention dans ce type de méthodes est la réinitialisation des fonctions distance. Elle permet aujourd'hui, couplée à la méthode éléments finis de modéliser la recristallisation statique discontinue et la croissance de grains à l'échelle du grain. Elle permet aussi

d'envisager la possibilité de déterminer l'état déformé à partir d'une simulation en plasticité cristalline et ainsi de coupler simulation de la déformation et simulation du traitement thermique (R E Logé et al. 2008).

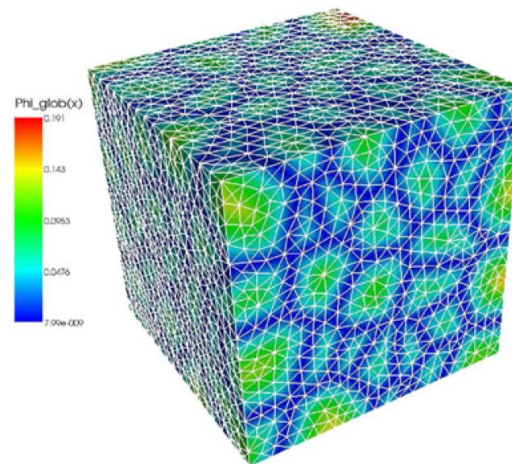


Figure 1-2. Exemple de microstructure 3D définie par la méthode Level-Set. Environ 200 grains sont modélisés et l'échelle indique la valeur de la fonction distance (bleu pour 0) (Bernacki et al. 2009)

#### 4. Résumé

Le tableau 1-2 résume les différentes caractéristiques, avantages et inconvénients de chaque méthode décrite ci-dessus.

De ce panorama, il apparaît donc qu'en raison de la description simpliste de la recristallisation du modèle JMAK, les efforts se soient portés vers une description topologique de la microstructure et de ses hétérogénéités pour rendre compte de ces effets sur la recristallisation et la croissance de grains. Les méthodes présentées ci-dessus permettent d'étudier explicitement les phénomènes de recristallisation et/ou de croissance de grains à l'échelle du grain mais elles présentent encore des difficultés à représenter de manière fidèle et rapide les deux phénomènes en même temps.

Afin de modéliser la recristallisation et la croissance de grains, nous avons donc choisi de nous concentrer sur une autre méthode de description de la microstructure grâce à un modèle en champ moyen. Cette méthode est intermédiaire entre une approche JMAK et les approches « topologiques ». Elle permet de représenter simplement la microstructure par des distributions de paramètres microstructuraux et des milieux homogènes équivalents (pas ou peu de topologie) tout en tenant compte des hétérogénéités de la microstructure. La modélisation en champ moyen apparaît donc comme une bonne alternative, avec des temps de calculs réduits, applicable dans un contexte industriel.

Tableau 1-2. Comparaison de différentes méthodes de modélisation de la recristallisation statique discontinue et de la croissance de grains

Méthode	Recristallisation statique discontinue	Croissance de grains	Avantages	Inconvénients
JMAK	++	--	Modèle simple et rapide	Ne prend pas en compte la microstructure à proprement parler et ses hétérogénéités
Monte Carlo	+	++	Méthode utilisant des règles simples Représentation explicite de la microstructure (topologie) Bonne gestion des événements topologiques Prise en compte des hétérogénéités de la microstructure Représentation satisfaisante de la germination	Pas d'échelle temporelle → comparaison difficile avec les données expérimentales $v \neq mP$ en recristallisation Temps de simulation (représentativité statistique)
Automate cellulaire	++	+	Méthode utilisant des règles physiques simples Représentation explicite de la microstructure (topologie) Bonne gestion des événements topologiques Prise en compte des hétérogénéités de la microstructure Représentation satisfaisante de la germination	Difficultés à prendre en compte la courbure des joints de grains dans la force motrice Temps de simulation (représentativité statistique)
Vertex	-	+	Description explicite des interfaces par un maillage	Gestion des événements topologiques compliquée Modélisation de la germination difficile Pas de gradient d'énergie intragranulaire Extension en 3D trop complexe
Level-Set	++	++	Description de la microstructure et de ses hétérogénéités par un maillage (topologie) Représentation implicite des interfaces par une fonction distance Gestion simple des événements topologiques Bonne gestion de la germination	Réinitialisation des fonctions distances Temps de calcul
Champ de phase	+	++	Description de la microstructure et de ses hétérogénéités par un maillage (topologie) Représentation implicite des interfaces par une fonction de transition Gestion simple des événements topologiques	Description des densités d'énergie Temps de calcul

## II. PRINCIPE DE LA MODELISATION EN CHAMP MOYEN A DEUX MILIEUX HOMOGENES EQUIVALENTS

---

Le modèle choisi pour simuler et prédire la recristallisation statique discontinue et la croissance de grains dans le tantale est donc un modèle semi-analytique en champ moyen. Ce modèle se base en majeure partie sur un modèle de recristallisation dynamique précédemment développé au CEMEF (Mines ParisTECH) (Bernard et al. 2011) et seules quelques adaptations ont été réalisées pour le rendre utilisable en conditions statiques anisothermes. Un premier travail regroupant les modélisations dynamiques et statiques a été réalisé par Ke Huang dans sa thèse de doctorat (Ke Huang 2011).

La microstructure est implicitement décrite par des distributions de tailles de grains et de densités de dislocations représentatives de l'énergie de déformation stockée dans le matériau. Ces deux grandeurs seront considérées comme des variables d'état, la densité de dislocations résultant elle-même des conditions thermomécaniques subies par le matériau.

Dans un modèle en champ moyen, chaque grain représentatif interagit avec un milieu ayant les caractéristiques moyennes de la microstructure. Dans le cas de la modélisation des phénomènes dynamiques, toute la microstructure est continuellement déformée, et cela inclut également les grains recristallisés. La microstructure peut donc être représentée par un seul milieu homogène équivalent (Montheillet et al. 2009). Si la microstructure est homogène en terme de densité de dislocations, elle ne l'est par contre pas en terme de taille de grains, notamment à cause de l'apparition des nouveaux grains recristallisés. La nouveauté du modèle utilisé ici réside en la présence de deux milieux homogènes équivalents pour représenter à la fois les grains recristallisés (RX) et non recristallisés (NR). Grâce à ces deux milieux il est possible d'introduire des effets topologiques indirects (Bernard et al. 2011). Cette description est encore plus pertinente lorsque l'on souhaite décrire la recristallisation statique, la densité de dislocations étant très différente entre grains recristallisés et grains non recristallisés. La microstructure va évoluer par interactions entre chacun des grains représentatifs de la microstructure et ces deux milieux, selon des lois classiques de migration des joints de grains, de germination et de restauration.

### 1. Description de la microstructure initiale

La microstructure initiale (3D) est discrétisée en un nombre fini de grains représentatifs  $G$  de la microstructure en termes de taille de grains  $r$  et de densité de dislocations  $\rho$ . Chaque grain représentatif  $G_i$  est composé d'un nombre  $N_i$  de grains identiques considérés comme sphériques et caractérisés par un couple  $(r_i, \rho_i)$  (figure 1-3). Chaque grain représentatif  $G_i$  est donc finalement décrit par un triplet  $(r_i, \rho_i, N_i)$  où  $N_i$  représente un nombre de grains mais permet en fait de remonter à une fraction volumique.

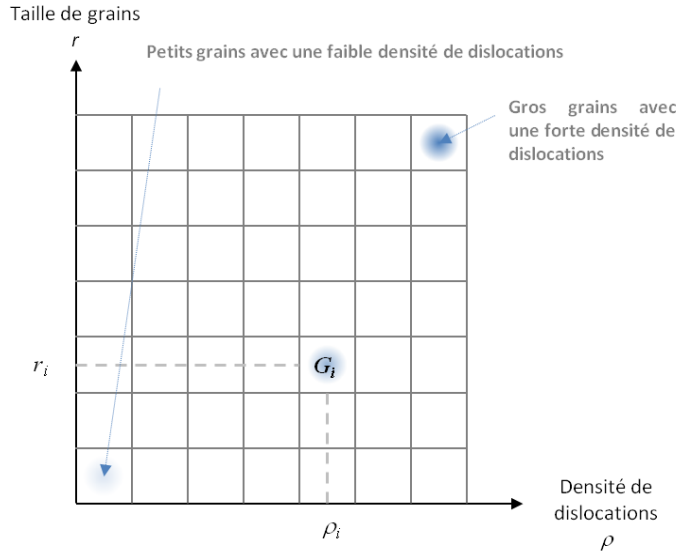


Figure 1-3. Discretisation de la microstructure en grains représentatifs dans l'espace  $(r, \rho)$  (dans cet exemple, 49 grains représentatifs distincts)

#### A. DISTRIBUTION DE TAILLE DE GRAINS 3D

A partir de la taille de grains moyenne  $\bar{d}_{3D}$  (diamètre moyen des grains en nombre et en trois dimensions), on construit une distribution des rayons des grains ayant pour valeur moyenne  $\bar{r}_{3D}$  ( $= \bar{d}_{3D}/2$ ). Cela permet de traduire l'hétérogénéité de taille de grains présente dans la microstructure. Cette distribution est, au choix, gaussienne ou lognormale, le but étant de représenter le plus physiquement possible une distribution réelle 3D de taille de grains.

Pour calculer la distribution de taille de grains, il est nécessaire de fixer la plage sur laquelle la distribution sera définie. La plage de définition est délimitée par une borne inférieure qui est une fraction de la valeur moyenne (équation 1.3) et par une borne supérieure qui est un produit de la valeur moyenne (équation 1.4). Le facteur  $f_g$  utilisé pour déterminer ces bornes est le même pour les deux extrémités.

$$r_{inf} = f_g \cdot \bar{r}_{3D} \quad \text{Equation 1.3}$$

$$r_{sup} = \frac{1}{f_g} \cdot \bar{r}_{3D} \quad \text{Equation 1.4}$$

Cet intervalle de définition continu est ensuite discrétisé en  $m_g$  catégories représentatives. Le poids de chaque catégorie est ensuite calculé suivant le type de distribution que l'on a choisi et l'on obtient ainsi une distribution 3D discrétisée de la taille de grains.

#### B. DISTRIBUTION DE DENSITES DE DISLOCATIONS

De la même manière que pour la taille de grains, on calcule une distribution gaussienne ou lognormale de la densité de dislocations à partir de la densité de dislocations moyenne représentative de la microstructure initiale. Cette distribution permet de représenter les hétérogénéités d'énergie stockée entre les différents grains représentatifs.

Une plage de définition de la distribution de densité de dislocations est également fixée et les bornes de l'intervalle sont calculées comme suit à partir du facteur  $f_d$ :

$$\rho_{inf} = f_d \cdot \bar{\rho} \quad \text{Equation 1.5}$$

$$\rho_{sup} = \frac{1}{f_d} \cdot \bar{\rho} \quad \text{Equation 1.6}$$

Cette plage de définition est ensuite découpée en  $m_d$  catégories.

### C. CONSTRUCTION DE LA MICROSTRUCTURE REPRESENTATIVE 3D

Pour construire la microstructure représentative en trois dimensions, les deux distributions précédentes sont combinées et le nombre de grains  $N_i$  dans chaque catégorie  $(r_i, \rho_i)$  est déterminé à partir du poids  $P_g$  de  $r_i$  dans la distribution de taille de grains et du poids  $P_d$  de  $\rho_i$  dans la distribution de densité de dislocations (équation 1.7).

$$N_i = P(r_i, \rho_i) = P_g(r_i) \cdot P_d(\rho_i) \quad \text{Equation 1.7}$$

Le nombre de grains de chaque catégorie est ensuite normalisé pour s'assurer d'avoir un volume de la microstructure représentative égal à 1.

La microstructure représentative est ainsi définie en 3D, elle est composée de  $m = m_g \cdot m_d$  catégories, toutes représentées par trois variables  $(r_i, \rho_i, N_i)$  (figure 1-4).

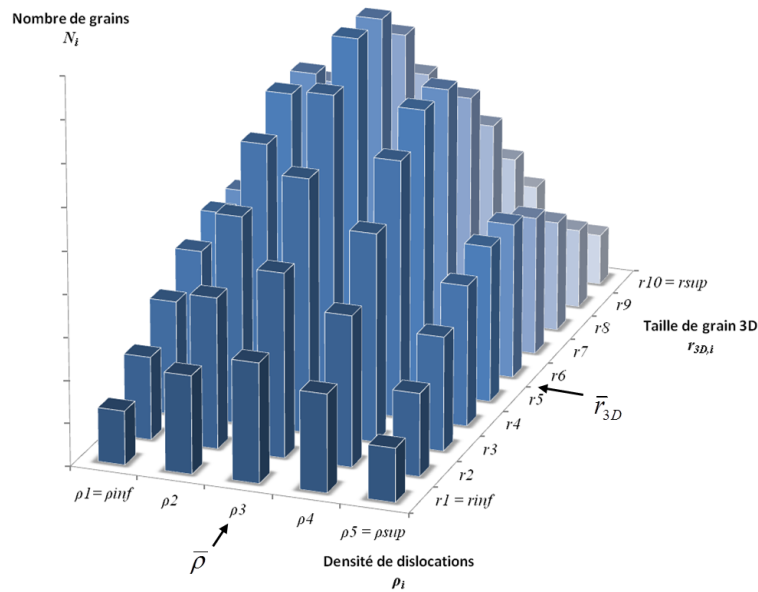


Figure 1-4. Microstructure représentative 3D utilisée par le modèle en champ moyen

## 2. Représentation des deux milieux homogènes équivalents

L'idée de la modélisation en champ moyen est que chaque grain représentatif de la microstructure ne va pas interagir individuellement avec chacune des autres catégories de grains, mais avec un milieu homogène équivalent (MHE) à celles-ci.

Dans le modèle développé au CEMEF (Bernard et al. 2011), chaque grain ne va pas interagir avec un seul MHE comme dans (Montheillet et al. 2009) mais avec deux MHE représen-



tatifs des grains non recristallisés (NR) et des grains recristallisés (RX) (figure 1-5). Chaque MHE est représenté par une densité de dislocations moyenne et une taille de grains moyenne.

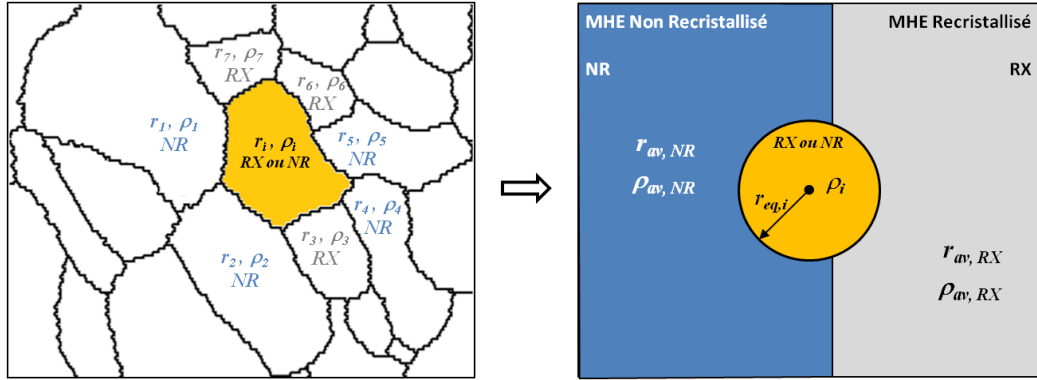


Figure 1-5. Représentation d'une microstructure partiellement recristallisée (à gauche) par deux milieux homogènes équivalents (à droite)

### 3. Les équations d'évolution de base

Au cours de la simulation, les grains représentatifs de la microstructure vont évoluer selon 3 mécanismes élémentaires:

- Migration des joints de grains,
- Restauration,
- Germination.

Après une description de la modélisation des ces phénomènes, un dernier point concernera spécifiquement les interactions des grains représentatifs avec les milieux homogènes équivalents.

#### A. MIGRATION DES JOINTS DE GRAINS

La migration des joints de grains est due à la fois à la différence d'énergie volumique de part et d'autre du joint de grains et à l'énergie surfacique liée à la courbure locale du joint. La force motrice  $\Delta E$  responsable de cette migration s'écrit donc (Humphreys & Hatherly 2004) :

$$\Delta E = \tau \Delta \rho + \gamma_b \Delta \left( \frac{1}{r} \right) \quad \text{Equation 1.8}$$

Où  $\tau$  est l'énergie linéique moyenne des dislocations,  $\gamma_b$  est l'énergie surfacique moyenne des joints de grains,  $\Delta \rho$  est la différence de densité de dislocations de part et d'autre du joint de grains et  $\Delta \left( \frac{1}{r} \right)$  est la différence de courbure entre le grain considéré et son voisinage. Dans le cas de la modélisation en champ moyen, le concept de voisinage est remplacé par celui de milieu homogène équivalent.

Les deux termes  $\tau$  et  $\gamma_b$  sont estimés à partir des deux relations suivantes :

$$\tau \approx \frac{Gb^2}{2} \quad \text{Equation 1.9}$$

$$\gamma_b \approx \frac{Gb}{48} \quad \text{Equation 1.10}$$

Avec  $G$  le module de cisaillement élastique (en Pa) et  $b$  la norme du vecteur de Burgers (en m).

La vitesse de migration des joints de grains est proportionnelle à cette force motrice :

$$v = m\Delta E \quad \text{Equation 1.11}$$

Où  $v$  est la vitesse de migration du joint de grains,  $m$  sa mobilité et  $\Delta E$  la force motrice. Si la vitesse de migration est positive, le grain considéré va croître aux dépens du milieu homogène équivalent. Inversement si elle est négative, le grain rétrécit en taille.

La mobilité d'un joint de grains dépend généralement de la température et de sa nature cristallographique (angle et axe de désorientation, plan cristallin). Cependant, le modèle n'ayant pas l'orientation cristallographique comme variable d'état, et cette dépendance étant souvent mal connue, nous ne la considérerons pas dans l'expression de la mobilité.

Dans un métal pur, la mobilité est sensible aux impuretés présentes et notamment aux atomes en solution solide ségrégés aux abords des joints de grains (Gottstein & Shvindlerman 1999). Même en très faible quantité, ces impuretés influencent significativement la vitesse de migration des joints de grains (D A Molodov et al. 1998).

Selon la théorie de Cahn-Lücke-Stüwe (Cahn 1962; Lücke & Stüwe 1963), ces atomes en solution solide auraient un effet direct sur la mobilité d'un joint de grains suivant la vitesse de migration de celui-ci. Ils proposent une expression de la relation entre vitesse de migration  $v$  et force motrice  $\Delta E$  :

- Aux faibles vitesses de migration

$$\Delta E = \frac{v}{m} + \alpha c_0 v = \left( \frac{1}{m} + \alpha c_0 \right) v \quad \text{Equation 1.12}$$

- Aux fortes vitesses de migration

$$\Delta E = \frac{v}{m} + \frac{c_0}{\alpha' v} \approx \frac{v}{m} \quad \text{Equation 1.13}$$

Avec  $c_0$  la concentration des atomes en solution solide ségrégés aux joints de grains,  $m$  la mobilité intrinsèque des joints de grains,  $\alpha$  et  $\alpha'$  des constantes. On constate qu'aux fortes vitesses de migration, le second terme de l'équation 1.13 peut être négligé et on retrouve la relation classique entre vitesse de migration et force motrice. Dans le cas des faibles vitesses, l'équation 1.12 revient à dire que la mobilité des joints de grains change et devient égale à :

$$m' = \left( \frac{1}{m} + \alpha c_0 \right)^{-1} \quad \text{Equation 1.14}$$

La valeur de  $m'$  est donc inférieure à celle de  $m$  dans le régime des faibles vitesses de migration.

Une difficulté réside dans la détermination du régime de vitesse de migration, la vitesse ne pouvant être calculée qu'en connaissant la mobilité. Nous avons donc choisi de différer

rencier les régimes, non pas par la vitesse de migration comme le veut la théorie de Cahn-Lücke-Stüwe, mais par l'amplitude de la force motrice source de la migration des joints de grains (Gottstein & Shvindlerman 1999). Une force motrice élevée entraîne généralement une migration rapide des joints de grains. Dans le modèle, nous introduisons donc un seuil en force motrice  $\Delta E_{th}$  entre un grain et son environnement pour différencier les deux régimes de mobilité. Les vitesses élevées de migration des joints de grains étant généralement (mais pas uniquement) observées en recristallisation (force motrice liée à la densité de dislocations), nous noterons la mobilité aux fortes vitesses  $m_{ReX}$ . De même, la mobilité aux faibles vitesses de migration sera notée  $m_{GG}$  car ces vitesses sont plutôt caractéristiques d'un régime de croissance de grains. En pratique, nous avons donc modifié le programme du modèle en champ moyen pour qu'il prenne en compte cette double mobilité qui serait attribuée à la présence d'atomes en solution solide au niveau des joints de grains.

La dépendance en température de la mobilité s'écrit usuellement sous la forme d'une loi d'Arrhénius. Les deux mobilités  $m_{ReX}$  et  $m_{GG}$  s'écrivent donc :

$$m_{ReX \text{ ou } GG} = m_{0, ReX \text{ ou } GG} e^{-\frac{Q_{m, ReX \text{ ou } GG}}{RT}} \quad \text{Equation 1.15}$$

Avec  $m_{0,i}$  la constante de mobilité et  $Q_{m,i}$  l'énergie d'activation de la migration des joints de grains pour le régime considéré,  $R$  la constante des gaz parfaits,  $T$  la température.

Lorsqu'un joint va migrer, il va balayer la matrice déformée et laisser derrière lui un matériau avec une densité de dislocations très faible ( $\rho_0$ ). Lors de l'augmentation de volume d'un grain, la densité de dislocations va donc diminuer en suivant l'équation suivante :

$$\Delta(\rho V) = \rho_0 \Delta V \quad \text{Equation 1.16}$$

## B. RESTAURATION

En raison de l'élévation de température, une partie des dislocations de l'état initial vont s'annihiler ou se réorganiser provoquant une diminution de l'énergie stockée dans les grains. La restauration peut être considérée soit à l'échelle locale soit à l'échelle macroscopique. Modéliser la restauration de manière locale revient à représenter directement la réorganisation des dislocations en une structure en cellules (Brechet et al. 2009) comme ce qui a pu être fait dans le cas de la modélisation de la recristallisation dynamique continue (Gourdet & Montheillet 2003). Dans notre cas, la microstructure n'est pas représentée avec autant de détails. Nous utiliserons donc une description macroscopique de la restauration qui entraîne une diminution globale de l'énergie stockée dans le matériau, cette énergie provenant de la densité de dislocations accumulée au cours de la déformation. Les lois de restauration sont le plus souvent établies de manière empirique et choisies, dans des conditions isothermes, sous la forme (Humphreys & Hatherly 2004) :

$$\frac{d\rho}{dt} = -\lambda \rho^m \quad \text{Equation 1.17}$$

Avec  $\rho$  la densité de dislocations,  $\lambda$  et  $m$  des constantes du modèle. L'annihilation et le mouvement des dislocations étant des phénomènes thermiquement activés, la dépendance à

la température est introduite dans la relation (1.17) à travers une énergie d'activation pour le mouvement et l'annihilation des dislocations (Houillon 2009) :

$$\frac{d\rho}{dt} = -\lambda\rho^m e^{-\frac{Q_r}{kT}} \quad \text{Equation 1.18}$$

Où  $k$  est la constante de Boltzmann,  $T$  la température en Kelvin et  $Q_r$  l'énergie d'activation du mouvement et de l'annihilation des dislocations. Une restauration complète du matériau (diminution de la densité de dislocations jusqu'à celle du matériau recristallisé) n'est possible que dans le cas des petites déformations plastiques (Masing & Raffelsieper 1950; Michalak & Paxton 1961). Sinon, pour des temps long, la densité de dislocations atteint une valeur asymptotique  $\rho_\infty$  a priori supérieure à la valeur minimale  $\rho_0$ . L'équation 1.18 est alors modifiée pour prendre en compte cet effet, et l'exposant est fixé à 2 (Houillon 2009) :

$$\frac{d\rho}{dt} = -\lambda(\rho - \rho_\infty)^2 e^{-\frac{Q_r}{kT}} \quad \text{Equation 1.19}$$

Dans le modèle en recristallisation statique, la restauration ne s'applique donc qu'aux grains non recristallisés dont la densité de dislocations est supérieure à  $\rho_\infty$ .

### C. GERMINATION

Lorsque la densité de dislocations d'un grain représentatif est supérieure à la densité de dislocations critique  $\rho_{cr}$ , la germination est déclenchée et de nouveaux grains libres de dislocations sont créés. Il est généralement observé que plus l'échantillon est déformé et plus la recristallisation peut se déclencher à faible température. Ainsi, cette valeur critique sera exprimée en fonction de la température :

$$\rho_{cr} = f(T) \quad \text{Equation 1.20}$$

Une fois cette densité de dislocations critique atteinte, le nombre de germes activés  $N_{germes}$  est proportionnel au nombre total de sites potentiels pour l'apparition de nouveaux grains recristallisés. Si les nouveaux grains apparaissent de manière aléatoire et uniforme dans le volume, le nombre de sites potentiels sera proportionnel au volume total des grains pour lesquels  $\rho > \rho_{cr}$ . Si la germination se produit principalement aux joints de grains, la germination sera dite « en collier » et le volume total sera remplacé par la surface totale de joints de grains.

Le nombre de germes activés par unité de temps pour une catégorie de grains  $G_i$  dépend de la taille de grains  $r_i$ , de l'excès d'énergie stockée sous forme de dislocations par rapport à  $\rho_{cr}$  et donc du type de germination considéré (à travers un exposant  $q$  égal à 3 dans le cas d'une germination en volume et égal à 2 si la germination est en collier) :

$$\dot{N}_{germes,i} = K_g(V_{cr} \text{ ou } S_{cr}) \frac{N_i r_i^q (\rho_i - \rho_{cr})^{b_g}}{\sum_{\rho > \rho_{cr}} N_k r_k^q (\rho_k - \rho_{cr})^{b_g}} \quad \text{Equation 1.21}$$

Où  $b_g$  est une constante proche de 3 (Montheillet et al. 2009),  $V_{cr}$  le volume total ou  $S_{cr}$  la surface totale des grains pour lesquels  $\rho > \rho_{cr}$ ,  $N_i$ ,  $r_i$  et  $\rho_i$  le nombre de grains, la taille de grains et la densité de dislocations de la catégorie  $i$ . Le facteur de proportionnalité  $K_g$  dépend essentiellement de la température mais peut également dépendre du temps. En effet, un facteur constant dans le temps va permettre de simuler une germination continue. Au contraire, la germination en sites saturés pourra être modélisée avec  $K_g$  non nul uniquement au premier pas de temps durant lequel la germination apparaît.

La taille des germes  $r_u$  est calculée à partir d'une condition de stabilité d'un germe dans une matrice déformée pour laquelle  $\rho > \rho_{cr}$  :

$$\tau(\rho_{cr} - \rho_0) = \frac{2\gamma_b}{r_u} \quad \text{Equation 1.22}$$

En considérant que  $\rho_0 \ll \rho_{cr}$ , et un coefficient multiplicatif  $\alpha$  permettant de s'assurer de la stabilité du germe lorsqu'il apparaît, la taille du germe est donnée par :

$$r_u = \alpha \cdot \frac{2\gamma_b}{\tau\rho_{cr}} \quad \text{Equation 1.23}$$

Les germes sont créés dans la microstructure représentative comme une nouvelle catégorie de grains avec une taille de grains initiale  $r_u$  et une densité de dislocations égale à la densité de dislocations du matériau recristallisé,  $\rho_0$ .

#### Remarque

Dans l'hypothèse d'une germination en sites saturés, un seul grain représentatif recristallisé est créé dans la microstructure. Une fois la recristallisation terminée, la microstructure sera donc représentée par ce seul grain qui interagira avec lui-même. La croissance de grains intervenant après la recristallisation ne pourra donc être simulée.

#### D. INTERACTION AVEC LES MILIEUX HOMOGENES EQUIVALENTS

Chacun des grains représentatifs va interagir à chaque incrément avec les deux milieux homogènes équivalents. Deux cas de figures se présentent, soit le grain considéré est recristallisé soit il ne l'est pas. Dans ces deux cas, on définit une fraction surfacique d'interface mobile entre le grain et le MHE pour lequel la force motrice  $\Delta E$  est la plus importante (figure 1-6). C'est la cas des interfaces RX-NR.

Les forces motrices pour un grain recristallisé s'écrivent, avec le milieu non recristallisé de taille de grains moyenne  $r_{av,NR}$  et de densité de dislocations moyenne  $\rho_{NR}$  :

$$\Delta E_i^{NR} = \tau(\rho_{NR} - \rho_i) + \gamma_b \left( \frac{1}{r_{av,NR}} - \frac{1}{r_i} \right) \quad \text{Equation 1.24}$$

Et avec le milieu recristallisé de taille de grains moyenne  $r_{av,RX}$  et de densité de dislocations moyenne  $\rho_{RX}$  :

$$\Delta E_i^{RX} = \tau(\rho_{RX} - \rho_i) + \gamma_b \left( \frac{1}{r_{av,RX}} - \frac{1}{r_i} \right) \quad \text{Equation 1.25}$$

Dans le cas de la recristallisation statique  $\rho_i = \rho_{RX} = \rho_0$ , les équations (1.24) et (1.25) peuvent donc s'écrire :

$$\Delta E_i^{NR} = \tau(\rho_{NR} - \rho_0) + \gamma_b \left( \frac{1}{r_{av,NR}} - \frac{1}{r_i} \right) \quad \text{Equation 1.26}$$

$$\Delta E_i^{RX} = \gamma_b \left( \frac{1}{r_{av,RX}} - \frac{1}{r_i} \right) \quad \text{Equation 1.27}$$

Pour les grains non recristallisés :

$$\Delta E_j^{NR} = \tau(\rho_{NR} - \rho_j) + \gamma_b \left( \frac{1}{r_{av,NR}} - \frac{1}{r_j} \right) \quad \text{Equation 1.28}$$

$$\Delta E_j^{RX} = \tau(\rho_0 - \rho_j) + \gamma_b \left( \frac{1}{r_{av,RX}} - \frac{1}{r_j} \right) \quad \text{Equation 1.29}$$

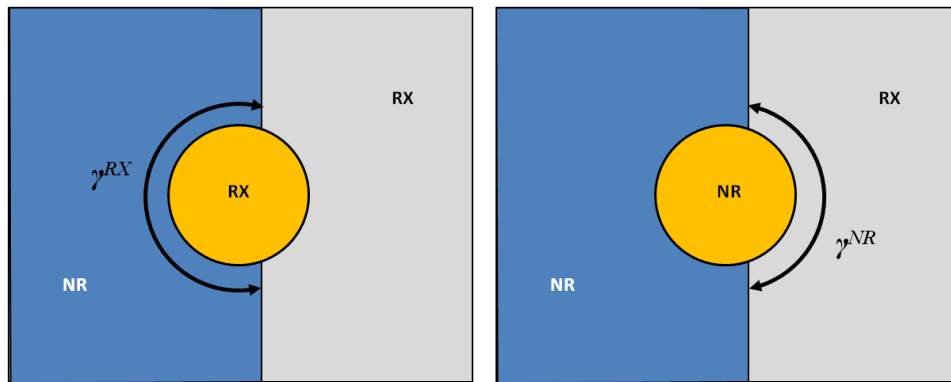


Figure 1-6. Définition (2D) des fractions surfaciques mobiles dans le cas d'un grain recristallisé (à gauche) et d'un grain non recristallisé (à droite)

A partir de l'équation (1.11), les variations totales des volumes recristallisé aux dépends du MHE-NR ( $\Delta V_{RX/NR}$ ) et non recristallisé aux dépends du MHE-RX ( $\Delta V_{NR/RX}$ ) sur un incrément de temps  $\Delta t$  sont données par :

$$\Delta V_{RX/NR} = \sum_{RX} \gamma^{RX} N_i \Delta V_{RX/NR,i} = \sum_{RX} \gamma^{RX} N_i 4\pi r_i^2 m \Delta E_i^{NR} \Delta t \quad \text{Equation 1.30}$$

$$\Delta V_{NR/RX} = \sum_{NR} \gamma^{NR} N_j \Delta V_{NR/RX,j} = \sum_{NR} \gamma^{NR} N_j 4\pi r_j^2 m \Delta E_j^{RX} \Delta t \quad \text{Equation 1.31}$$

La fraction surfacique d'interface mobile  $\gamma^{RX}$  représente la proportion d'interface d'un grain recristallisé en contact avec le milieu NR. Au début de la recristallisation, lorsque les nouveaux grains apparaissent et n'interagissent pas encore entre eux,  $\gamma^{RX}$  est égale à 1. A partir

de la notion de volume recristallisé étendu  $V_{ext}$  définie par Avrami (Avrami 1939), qui ignore les interactions entre grains, on peut exprimer la variation réelle de volume recristallisé par :

$$\Delta V_{RX/NR} = (1 - X)\Delta V_{ext} \quad \text{Equation 1.32}$$

Avec  $X$  la fraction volumique de grains recristallisés. Ainsi, en comparant les équations (1.30) et (1.32), la fraction surfacique mobile  $\gamma^{RX}$  évolue selon la loi suivante :

$$\gamma^{RX} = 1 - X \quad \text{Equation 1.33}$$

Dans le cas d'une germination en collier, les grains recristallisés vont interagir plus vite que dans le cas d'une germination aléatoire en volume. La relation (1.33) a donc été modifiée (Bernard et al. 2011) pour prendre en compte le fait que  $\gamma^{RX}$  décroît plus vite que  $1 - X$  :

$$\gamma^{RX} = 1 - X^n \quad \text{Equation 1.34}$$

L'exposant  $n$  intervenant sur la fraction recristallisée est un paramètre difficile à obtenir, mais doit être inférieur à l'unité. Pour simplifier le problème, il est possible de considérer que les grains recristallisés vont entrer en contact tous en même temps, et qu'à ce moment là les grains non recristallisés seront tous complètement entourés de grains recristallisés. La fraction surfacique mobile  $\gamma^{RX}$  sera donc approximée égale à 1 jusqu'à ce que  $\gamma^{NR}$  deviennent égale à 1 (figure 1-7).

Cette proportion d'interface entre un grain non recristallisé et le milieu RX est calculée à partir de  $\gamma^{RX}$  et de la conservation du volume (1.35).

$$\Delta V_{RX/NR} = -\Delta V_{NR/RX} \quad \text{Equation 1.35}$$

$$\gamma^{NR} = -\gamma^{RX} \cdot \frac{\sum_{RX} N_i \Delta V_{RX/NR,i}}{\sum_{NR} N_j \Delta V_{NR/RX,j}} \quad \text{Equation 1.36}$$

$\gamma^{NR}$  croît de manière monotone jusqu'à atteindre 1. Ce paramètre est ensuite conservé constant et égal à 1 (ce qui correspond à des grains NR complètement entourés de grains RX) et un basculement s'opère. La fraction surfacique mobile  $\gamma^{RX}$  décroît puisque les grains RX commencent à rentrer en contact. La décroissance est calculée à partir de l'équation :

$$\gamma^{RX} = -\gamma^{NR} \cdot \frac{\sum_{NR} N_j \Delta V_{NR/RX,j}}{\sum_{RX} N_i \Delta V_{RX/NR,i}} \quad \text{Equation 1.37}$$

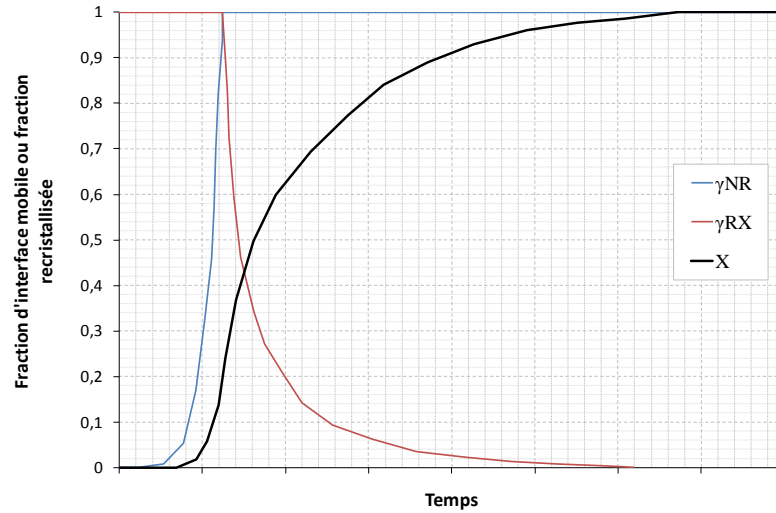


Figure 1-7. Evolutions des fractions d'interfaces mobiles au cours de la recristallisation

Pour l'instant seules les interfaces RX-NR ont été considérées puisqu'étant les plus mobiles. Cependant, les interfaces entre grains et milieux de même type doivent également être prises en compte lors de l'évolution de la microstructure. En conditions statiques, la migration des interfaces entre grains recristallisés et le milieu RX sera uniquement entraînée par les effets capillaires. La variation de volume par grain représentatif lors d'un incrément de temps  $\Delta t$  s'écrit (voir relations 1.30 et 1.31) :

$$\Delta V_{RX/RX,i} = 4\pi r_i^2 m \Delta E_i^{RX} \Delta t \quad \text{Equation 1.38}$$

$$\Delta V_{NR/NR,j} = 4\pi r_j^2 m \Delta E_j^{NR} \Delta t \quad \text{Equation 1.39}$$

Dans un premier temps, seuls les grains pour lesquels ces interfaces peu mobiles vont entraîner une croissance seront considérés et un volume total « gagné » sera calculé pour les interfaces RX-RX ( $\Delta V_{RX/RX}$ ) et NR-NR ( $\Delta V_{NR/NR}$ ).

$$\Delta V_{RX/RX} = \sum_{\Delta E_i^{RX} > 0} (1 - \gamma^{RX}) N_i \Delta V_{RX/RX,i} \quad \text{Equation 1.40}$$

$$\Delta V_{NR/NR} = \sum_{\Delta E_j^{NR} > 0} (1 - \gamma^{NR}) N_j \Delta V_{NR/NR,j} \quad \text{Equation 1.41}$$

Ce volume « gagné » est ensuite utilisé pour calculer le volume « perdu » par chaque grain représentatif pour lequel la force motrice  $\Delta E$  tend à le faire décroître (équations 1.42 et 1.43). Ainsi, le volume est conservé. On note que les équations prennent en compte le fait que la décroissance sera d'autant plus importante que le terme  $\Delta E$  sera grand en valeur absolue.

$$\Delta V_{RX/RX,i} = -\Delta V_{RX/RX} \frac{r_i^2 \Delta E_i^{RX}}{\sum_{\Delta E_k^{RX} < 0} N_k r_k^2 \Delta E_k^{RX}} \quad \text{Equation 1.42}$$



$$\Delta V_{NR/NR,j} = -\Delta V_{NR/NR} \frac{r_j^2 \Delta E_j^{NR}}{\sum_{\Delta E_k^{NR} < 0} N_k r_k^2 \Delta E_k^{NR}} \quad \text{Equation 1.43}$$

Pour chaque grain représentatif, la variation de volume due à la migration des joints de grains s'écrit :

$$\text{Si } G_k \in RX, \quad \Delta V_i = \gamma^{RX} \Delta V_{RX/NR,i} + (1 - \gamma^{RX}) \Delta V_{RX/RX,i} \quad \text{Equation 1.44}$$

$$\text{Si } G_k \in NR, \quad \Delta V_j = \gamma^{NR} \Delta V_{NR/RX,j} + (1 - \gamma^{NR}) \Delta V_{NR/NR,j} \quad \text{Equation 1.45}$$

A partir de cette gestion des différents volumes, le volume unitaire de la microstructure est conservé.

#### 4. Implémentation numérique du modèle en champ moyen en conditions anisothermes

La principale évolution par rapport au modèle dynamique décrit dans (Bernard et al. 2011) réside dans le caractère anisotherme des simulations de traitements thermiques. En effet, si l'on souhaite modéliser complètement les évolutions microstructurales, il est nécessaire de prendre en compte le chauffage et le refroidissement.

##### A. GESTION DU PAS DE TEMPS

Lors du chauffage ou du refroidissement, le pas de temps  $\Delta t$  est automatiquement calculé à partir de la rampe de température considérée comme linéaire (1.46). Ce pas de temps est ajusté de manière à ce qu'entre deux incréments il y ait un écart maximum de température  $\Delta T_{max}$  de 1°C.

$$\begin{cases} \Delta t = \frac{\Delta T_{max}}{|\dot{T}|} & \text{si } |\dot{T}| \neq 0 \\ \Delta t = \Delta t_{palier} & \text{sinon} \end{cases} \quad \text{Equation 1.46}$$

Avec  $|\dot{T}|$  la valeur absolue de la vitesse de chauffage ou de refroidissement. Lorsque le palier de température est atteint, la vitesse devient nulle et le pas de temps devient égal à  $\Delta t_{palier}$ . La valeur du pas de temps sur le palier est par défaut égal à 1s mais est modifiable par l'utilisateur.

Ce pas de temps « thermique » peut être encore réduit selon le critère de disparition des grains représentatifs déjà présent dans le modèle dynamique. Dans le cas où un grain représentatif est en train de décroître, si le volume perdu avec le pas de temps initial est plus important que le volume disponible, le pas de temps initial est alors adapté. En considérant que la variation de volume est linéaire en fonction du temps, le pas de temps est recalculé pour générer une variation de volume égale au volume du grain qui disparaît.

**B. ALGORITHME**

La figure 1-8 présente un algorithme schématisé de la résolution du modèle de recristallisation et croissance de grains à partir du modèle en champ moyen à deux milieux homogènes équivalents.

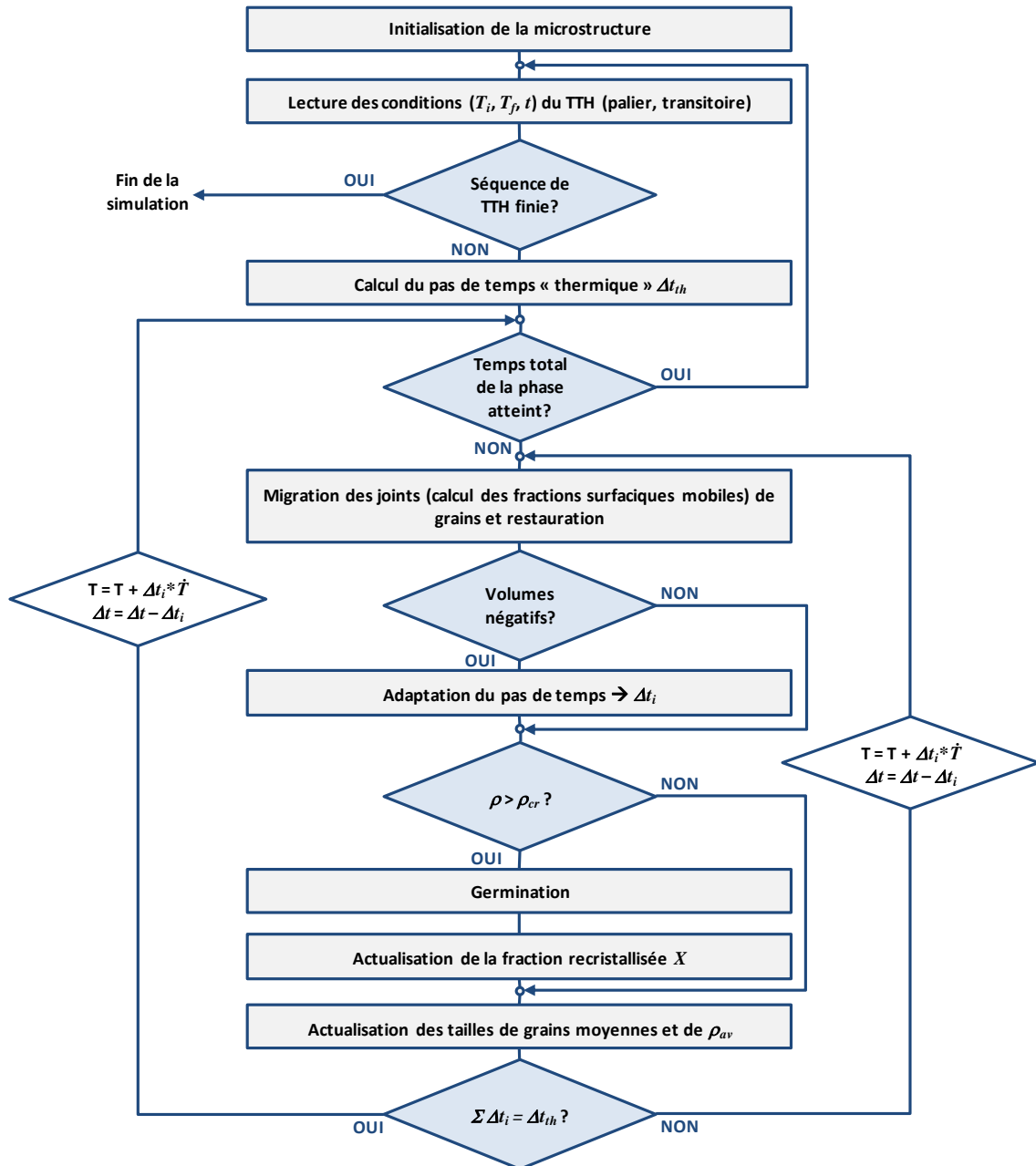


Figure 1-8. Algorithme schématisé de résolution du modèle en champ moyen

### 5. Récapitulatif et méthodes de détermination des paramètres du modèle

Le modèle de recristallisation et croissance de grains proposé ci-dessus nécessite la détermination d'un certain nombre de paramètres spécifiques liés au matériau que l'on considère. Le tableau 1-3 résume les différents paramètres à déterminer et hypothèses qu'il est

nécessaire d'établir pour faire fonctionner le modèle. Différentes méthodes sont également proposées pour la détermination de ces inconnues.

**Tableau 1-3. Récapitulatif des paramètres et hypothèses liés au matériau pour simuler la recristallisation par le modèle en champ moyen (\* renvoie à une description plus approfondie de la méthode de détermination, voir suite de la section 5)**

	Paramètre ou hypothèse	Symbole	Méthodes de détermination
<b>Microstructure initiale</b>	Densité de dislocations initiale (moyenne + distribution)	$\rho$	*
	Taille de grains 3D (moyenne et distribution en nombre)	$\bar{d}_{3D}$	Microscopie optique et/ou EBSD (distribution) + conversion 2D/3D
<b>Migration des joints de grains</b>	Energie linéique moyenne des dislocations	$\tau$	Littérature
	Energie surfacique moyenne des joints de grains	$\gamma_b$	Littérature
	Densité de dislocations de l'état recristallisé	$\rho_0$	Littérature et/ou détermination à partir du comportement mécanique
	Mobilité	$m_{ReX}$ ou $GG$ : $m_{0,ReX}$ et $Q_{m,ReX}$ $m_{0,GG}$ et $Q_{m,GG}$	*
	Seuil de transition entre les régimes de mobilité	$\Delta E_{th}$	Optimisation du modèle sur données expérimentales
<b>Restauration</b>	Type de loi	-	Littérature
<b>Germination</b>	Densité de dislocations critique	$\rho_{cr}$	*
	Type de germination	$q$	Observation de la microstructure (optique et EBSD)
	Exposant de la loi de germination	$b_g$	Littérature ( $\approx 3$ (Montheillet et al. 2009))
	Constante de germination	$K_g$	Optimisation du modèle sur données expérimentales

La plupart des paramètres pourront être déterminés assez simplement à partir de la littérature ou d'observations de la microstructure. Pour certaines de ces grandeurs, nous proposons des méthodes expérimentales originales pour calibrer le modèle.

#### A. DENSITE DE DISLOCATIONS DE L'ETAT INITIAL

Alors que la taille de grains et sa distribution sont assez simples à obtenir par microscopie, la densité de dislocations de l'état initial est une grandeur plus complexe à mesurer expérimentalement. Nous proposons donc de l'évaluer à partir de mesures de microdureté Vickers en établissant une relation directe entre cette dureté et la densité de dislocations totale :

$$\rho = f(HV) \quad \text{Equation 1.47}$$

Cette méthode sera décrite dans la deuxième partie de ce document.

#### B. MOBILITE DES JOINTS DE GRAINS

Cette grandeur est essentielle dans la modélisation de la recristallisation et de la croissance de grains. Dans le cas des métaux purs, nous avons vu qu'il était nécessaire de pouvoir

distinguer deux mobilités suivant la vitesse de migration des joints de grains qui est directement reliée à la force motrice source de la migration.

Dans le cas d'un matériau sans changement de phase, sans précipitation et dissolution de particules de seconde phase, la mobilité liée à la courbure locale des joints de grains pour une température donnée pourra être identifiée grâce à une expérience de croissances de grains.

A cette même température, la mobilité aux vitesses de migration les plus élevées sera identifiée lors de la phase de recristallisation par comparaison entre les cinétiques expérimentales et celles obtenues par la simulation du traitement thermique.

La dépendance en température de ces deux mobilités pourra être évaluée en réalisant ces mêmes expériences à des températures différentes.

### *C. DENSITE DE DISLOCATIONS CRITIQUE*

---

Pour déterminer la densité de dislocations critique pour déclencher la recristallisation ainsi que sa dépendance en température, nous proposons de réaliser des essais mécaniques générant un gradient de déformation et donc de densité de dislocations. Ces échantillons déformés dont la densité de dislocations sera mesurée ou connue, seront ensuite recuits. La microstructure sera observée par microscopie pour définir à partir de quelle densité de dislocations on voit apparaître des grains recristallisés. En réalisant des traitements à plusieurs températures, on pourra ainsi déterminer la loi reliant la valeur de densité de dislocations critique et la température. Ces essais seront développés dans la troisième partie.

## SYNTHESE

---

Dans cette partie, nous avons pu justifier de l'intérêt d'utiliser un modèle semi-analytique pour modéliser la recristallisation et la croissance de grains. Du panorama des modèles généralement utilisés, la modélisation en champ moyen apparaît comme un bon compromis permettant d'avoir des temps de simulation très courts tout en décrivant les hétérogénéités de la microstructure et leurs effets sur les évolutions microstructurales. Il sera ainsi possible de coupler cette modélisation à l'échelle dite mésoscopique à un code éléments finis (par exemple FORGE®) pour permettre de simuler la recristallisation statique discontinue et la croissance de grains à l'échelle d'une pièce industrielle.

Le modèle en champ moyen utilisé et développé au CEMEF présente la nouveauté de modéliser l'environnement d'un grain représentatif par deux milieux homogènes équivalents représentant les grains non recristallisés et recristallisés. Il décrit les évolutions microstructurales par des mécanismes élémentaires que sont la migration des joints de grains, la germination et la restauration. Dans le cas des métaux purs et de la recristallisation statique, nous avons vu qu'il était nécessaire de pouvoir distinguer deux mobilités suivant la vitesse de migration des joints de grains qui est directement reliée à l'amplitude de la force motrice source de la migration. Le modèle initial a ainsi été modifié pour prendre en compte cet effet. L'implémentation numérique de ce modèle permet également une bonne gestion des pas de temps afin d'éviter des évolutions trop brusques de la microstructure.

Pour bien modéliser la recristallisation et la croissance de grains, il est nécessaire d'identifier un certain nombre de paramètres et de faire des hypothèses sur les types de lois à utiliser en fonction du matériau considéré. La plupart de ces inconnues peuvent être déterminées par des méthodes classiques. Nous proposerons également dans la suite de ce document des méthodes expérimentales peu courantes pour identifier certains paramètres. Nous nous attarderons plus spécialement sur la densité de dislocations initiale, la mobilité des joints de grains, l'énergie seuil ou encore sur la densité de dislocations critique.

Les parties suivantes sont dédiées à la recristallisation et la croissance de grains du tantale pur et à l'adaptation du modèle en champ moyen pour ce matériau. La deuxième partie sera consacrée à la caractérisation de l'état déformé en termes de densité de dislocations. Dans une troisième partie, nous nous attacherons à caractériser de manière expérimentale les mécanismes de recristallisation et de croissance de grains afin d'identifier les paramètres nécessaires au modèle et d'obtenir des données expérimentales avec lesquelles comparer les résultats de la modélisation. Enfin, la dernière partie sera consacrée à la modélisation du comportement en recristallisation du tantale et à l'évaluation de la pertinence du modèle.

## **DEUXIEME PARTIE.**

### **Loi de comportement du tantale pur et description de l'état déformé**

## INTRODUCTION

---

Les évolutions microstructurales durant un traitement thermique vont largement dépendre de la microstructure de déformation. La description de cet état déformé est donc de première importance. Dans le modèle développé dans la partie 1, la microstructure est décrite par une distribution de tailles de grains et de densités de dislocations. L'évaluation des tailles de grains se fait de manière classique à partir d'observations de la microstructure de déformation par microscopie optique ou électronique. Les densités de dislocations peuvent, quant à elles, être déterminée soit par simulation de la déformation plastique soit par mesures expérimentales juste après la déformation. Expérimentalement, une solution consiste à réaliser la mesure d'une grandeur qui est influencée par la densité de dislocations : on parle de mesures indirectes.

Dans cette deuxième partie, nous nous attacherons donc à ajuster une loi de comportement du tantale basée sur une densité de dislocations, qui a déjà été développée dans des travaux précédents (Buy 1996; Houillon 2009). Cette loi permettra de simuler la déformation plastique pour évaluer la densité de dislocations et sera également utilisée pour établir une mesure indirecte de celle-ci dans le tantale par une mesure de dureté Vickers. Nous examinerons enfin les microstructures de déformation à l'échelle du grain pour comprendre l'origine des hétérogénéités de microstructure intragranulaire dans ce matériau.

## I. LOI DE COMPORTEMENT DU TANTALE PUR BASEE SUR UNE DENSITE DE DISLOCATIONS

---

### 1. *Le comportement plastique du tantale pur*

Le tantale pur est un matériau très ductile, dont le comportement dépend énormément des conditions thermomécaniques appliquées lors de la déformation. Pour identifier précisément une loi de comportement, il est important de pouvoir évaluer ces effets, notamment sur la contrainte à la transition élasto-plastique et sur l'écrouissage. Dans ce but, nous allons commencer par collecter et analyser les données de la littérature.

#### A. CONTRAINTE D'ÉCOULEMENT A LA TRANSITION ELASTO-PLASTIQUE

---

Nous allons tout d'abord nous intéresser à la contrainte élastique du tantale. Cette contrainte est définie comme la contrainte nécessaire pour passer d'un régime de déformation réversible (comportement élastique) à un régime irréversible (comportement plastique). En règle générale pour les métaux, la partie élastique du comportement d'un matériau est considérée comme linéaire.

L'influence de la vitesse de déformation sur le comportement du tantale a été largement étudiée dans la littérature (Buy 1996; Fresnois 2001; Regazzoni 1983; Isbell et al. 1972; S. R. Chen & Gray III 1996; Hoge & Mukherjee 1977) et ceci pour différents modes de sollicitation simples : traction, compression et torsion. La figure 2-1 présente une compilation des contraintes d'écoulement de ces différentes études en fonction de la vitesse de déformation équivalente pour des essais réalisés à température ambiante. La contrainte d'écoulement aug-

mente avec la vitesse de déformation de 100 MPa à environ 550 MPa sur 8 décades ( $10^{-5} \text{ s}^{-1}$  –  $10^3 \text{ s}^{-1}$ ), soit une augmentation moyenne d'environ 55 MPa par décade. Le tantale est donc très visqueux à température ambiante. On constate également que ces données sont assez dispersées. Le tantale utilisé dans ces études, pouvant avoir des taux d'impureté légèrement différents, et le mode de sollicitation appliqué contribuent à cette dispersion. La méthode de détermination de la contrainte élastique est rarement indiquée, ce qui est également une source de dispersion dans les valeurs des différentes études. A partir de ces données, on peut calibrer une loi simple de type Norton-Hoff :

$$\sigma_y = K_{NH} \dot{\epsilon}^{m_{NH}} \quad \text{Equation 2.1}$$

Avec  $K_{NH}$  la consistance en MPa et  $m_{NH}$  le coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation. Les valeurs obtenues pour le tantale sont données dans le tableau 2-1. Pour comparaison, le coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation du tantale à température ambiante ( $T/T_m = 0,1$ ) est environ 4 à 5 fois supérieure à celui d'un acier IF à la même température (J. Jonas & Barnett 1997).

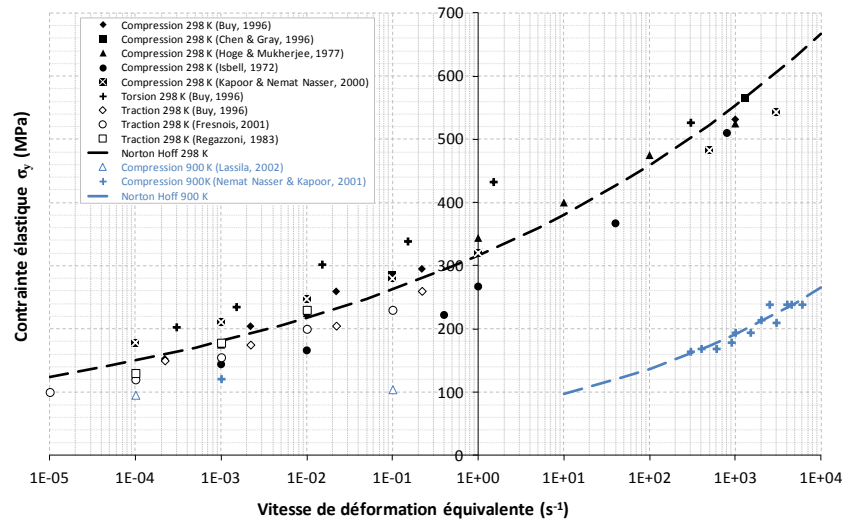


Figure 2-1. Evolution de la contrainte d'écoulement à la transition élasto-plastique en fonction de la vitesse de déformation équivalente (compilation de données de la littérature) à température ambiante

Tableau 2-1. Paramètres de la loi de Norton-Hoff (2.1) identifiés pour le tantale pur à partir des données de la littérature

Paramètre de la loi de Norton-Hoff	$K_{NH}$	$m_{NH}$
Valeurs identifiées à température ambiante	316 MPa	0,081
Valeurs identifiées à 900 K	70 MPa	0,145

La température va également entraîner une modification de la contrainte d'écoulement à la transition élasto-plastique. Malgré la difficulté de réalisation de ces essais (sous vide, secondaire si possible, pour des raisons d'oxydation), on peut néanmoins trouver dans la littérature des travaux se penchant sur cette dépendance de la contrainte d'écoulement à la température (Kapoor & Nemat-Nasser 2000; Nemat-Nasser & Kapoor 2001; Lassila et al. 2002; Hoge & Mukherjee 1977). Une série d'essais de compression à 900 K a été réalisée pour plusieurs vitesses de déformation de  $0,0001 \text{ s}^{-1}$  à environ  $6000 \text{ s}^{-1}$  (Kapoor &



Nemat-Nasser 2000; Lassila et al. 2002) (figure 2-2). Les niveaux de contrainte diminuent évidemment avec l'augmentation de la température. La vitesse de déformation a toujours pour effet d'augmenter la contrainte d'écoulement. La sensibilité à la vitesse de déformation est augmentée avec la température, le coefficient  $m_{NH}$  passant de 0,081 à 298 K à 0,145 à 900 K (sur la plage de vitesse de déformation équivalente  $10^2 - 10^4 \text{ s}^{-1}$ ). On retrouve ici l'équivalence temps / température, une augmentation de la vitesse de déformation ayant le même effet qu'une diminution de la température.

A 900 K, la contrainte d'écoulement ne dépend plus de la vitesse de déformation lorsque celle-ci est comprise entre  $10^{-4}$  et  $10^{-1} \text{ s}^{-1}$ . La contrainte est alors égale à 100 MPa, niveau de contrainte qui est atteint à  $10^{-5} \text{ s}^{-1}$  à température ambiante. On retrouve cette notion de contrainte seuil lorsque l'on trace l'évolution de la contrainte d'écoulement en fonction de la température à vitesse de déformation constante (figure 2-2). On remarque également que la température à laquelle est atteinte cette contrainte seuil augmente avec la vitesse de déformation. Il existe donc, pour une vitesse de déformation donnée, une température au dessus de laquelle la contrainte d'écoulement à la transition élasto-plastique ne dépend plus de la température. On retrouve ici la notion de plateau athermique déjà évoquée pour le tantale (Buy et al. 1997). Le tableau 2-2 donne une estimation des températures auxquelles est atteinte cette contrainte athermique pour différentes vitesses de déformation. Conformément à l'équivalence des effets de température et de vitesse de déformation, le plateau athermique observé à haute température peut également être observé aux faibles vitesses de déformation (figure 2-1).

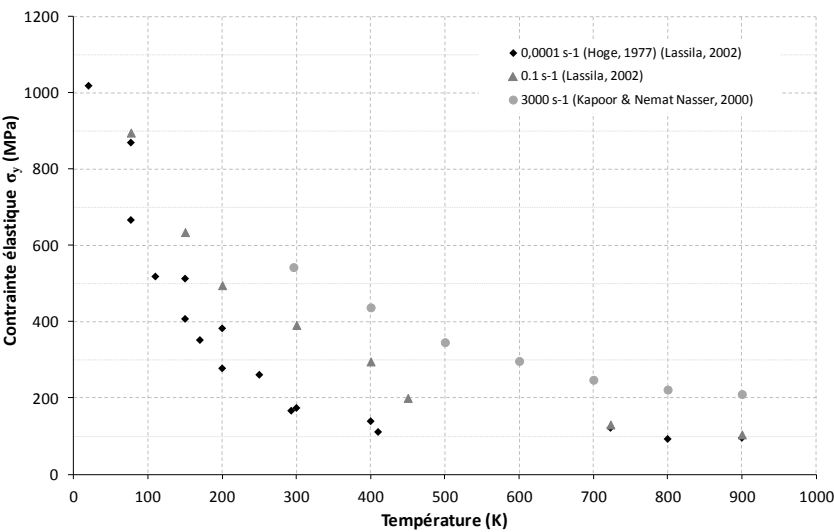


Figure 2-2. Evolution de la contrainte d'écoulement en fonction de la température pour trois vitesses de déformation (compilation de données de la littérature)

Tableau 2-2. Température seuil du plateau athermique pour trois vitesses de déformation

Vitesse de déformation ( $\text{s}^{-1}$ )	$10^{-4}$	$10^{-1}$	$3 \times 10^3$
Température du plateau athermique (K)	423	650	$\approx 2000$
Contrainte d'écoulement sur le plateau athermique	100 MPa		

## B. ECROUISSAGE DU TANTALE

L'écroissage correspond à l'augmentation de la contrainte au cours de la déformation plastique. Dans le cas du tantale, cet écroissage est de moins en moins important lorsque la vitesse de déformation augmente (figure 2-3.a), ce qui est un comportement assez inhabituel. L'écroissage est même quasi nul lorsque cette vitesse est très élevée. L'effet de la température est moins clair mais il semble tout de même que l'écroissage diminue lorsque la température augmente (figure 2-3.b).

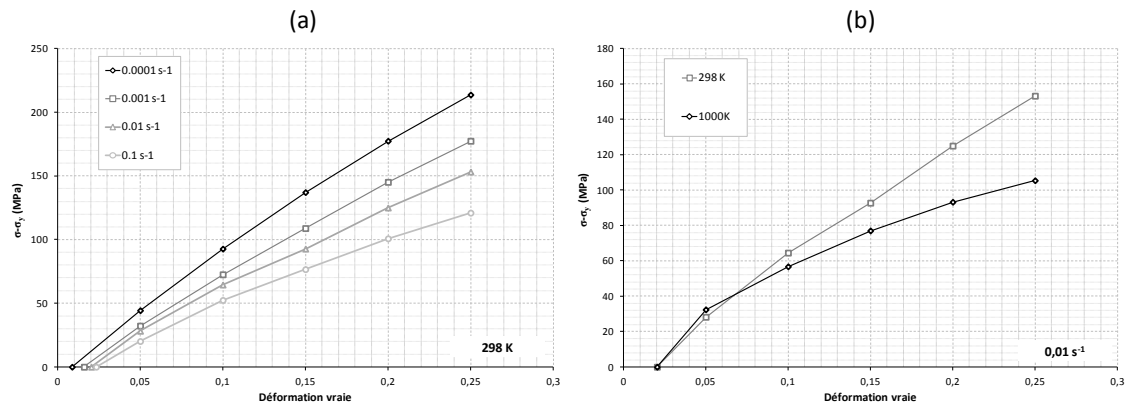


Figure 2-3. Écroissage (différence entre la contrainte et la contrainte d'écoulement) du tantale pur (données extraites de (Kapoor & Nemat-Nasser 2000)) en fonction

(a) de la vitesse de déformation à température ambiante

(b) de la température à une vitesse de déformation de 0,01 s<sup>-1</sup>

Le phénomène important à noter dans le cas du tantale est la saturation de la contrainte aux grandes déformations. Dans le cas de déformations complexes en ECAE (Equal Channel Angle Extrusion) (Mathaudhu & Hartwig 2007) ou en « swaging » (Sandim et al. 2000), les auteurs observent une saturation de la dureté Vickers à des niveaux de déformation importants ( $> 2$ ) (figure 2-4). Sur cette figure, on remarque que la dureté sature à des valeurs différentes. Cette observation ne peut être expliquée par les charges différentes utilisées pour la mesure de dureté Vickers, mais elle pourrait, en revanche, être liée à la différence de sollicitation mécanique (type de chargement et vitesse de déformation) entre les deux méthodes de déformation. L'écart existant déjà pour le matériau initial pourrait également être une source de cet écart sur la valeur de saturation de la dureté. Cette saturation de la dureté est due à la restauration dynamique. Au cours de la déformation, les dislocations vont d'abord se multiplier avant de se réorganiser en cellules (Wei et al. 2003). A partir d'un certain niveau de déformation, la microstructure atteint un régime stationnaire, la contrainte et la dureté saturent.

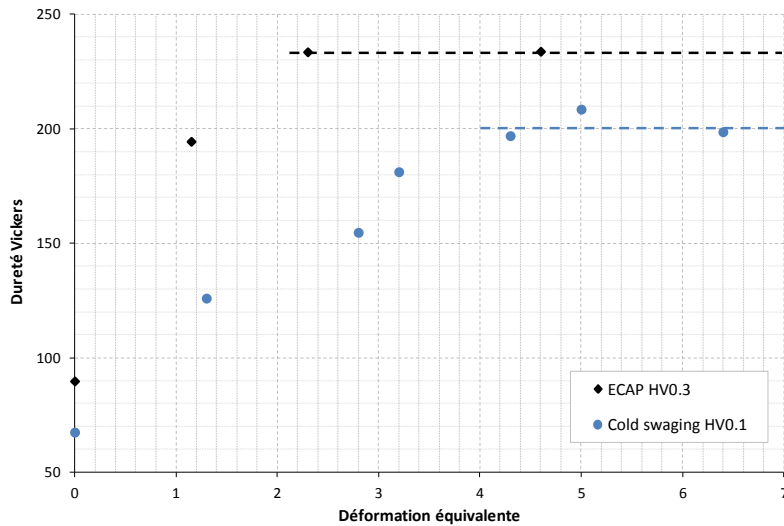


Figure 2-4. Saturation de la dureté après de fortes déformations pour deux types de sollicitation différents

## 2. Modélisation du comportement basée sur une densité de dislocations

Afin de pouvoir prédire la densité de dislocations après déformation dans le tantale, nous allons utiliser les données de la littérature pour ajuster les paramètres d'une loi de comportement formulée avec la densité de dislocations comme variable interne. Des essais de compression uniaxiale et de torsion réalisés dans (Houillon 2009) seront réutilisés pour identifier cette loi.

### A. DESCRIPTION DU MODELE

Le modèle de comportement utilisé depuis de nombreuses années au CEA DAM Valduc (Buy 1996; Farré & Buy 1999; Buy et al. 1997; Houillon 2009) s'appuie sur le formalisme proposé par Klepaczko (J. Klepaczko 1975). La contrainte est modélisée par deux composantes :

- Une contrainte athermique qui dépend uniquement de la densité de dislocations
- Une contrainte thermiquement activée correspondant au franchissement des obstacles à courte distance par les dislocations. Elle traduit les effets de la vitesse de déformation et de la température qui facilitent ou empêchent le franchissement de ces obstacles.

La contrainte équivalente s'écrit donc sous la forme:

$$\sigma = \sigma_{ath} + \sigma^* \quad \text{Equation 2.2}$$

Avec  $\sigma_{ath}$  la contrainte athermique et  $\sigma^*$  la contrainte thermiquement activée (ou contrainte effective).

Dans ce modèle, la contrainte athermique dépend d'une densité de dislocations qui sera exprimée en valeur relative vis-à-vis de la valeur minimale représentant l'état recristallisé. La densité de dislocations est donc ici une variable microstructurale représentative d'un état de contrainte macroscopique pour une microstructure donnée. Les valeurs de densité de dislocations identifiées seront donc dépendantes de la loi choisie pour les relier à la contrainte et également représentatives des effets de taille de grains, de composition chimique ou

d'anisotropie qui ont une influence sur le comportement mécanique et qui ne sont pas inclus dans le modèle. Il convient donc d'appeler cette variable interne « densité de dislocations équivalente », celle-ci pouvant différer significativement des densités réelles qui seraient mesurées, par exemple, par microscopie électronique en transmission. La grandeur relative est définie par :

$$\rho_{eq} = \frac{\rho_{eq,absolue}}{\rho_{eq,0}} \quad \text{Equation 2.3}$$

Avec  $\rho_0$  la densité de dislocations équivalente du matériau recristallisé. Sauf indication contraire, le terme  $\rho_{eq}$  renverra toujours à cette valeur relative.

Au cours de la déformation, la densité de dislocations équivalente va évoluer suivant (J. Klepaczk 1975) :

$$\frac{d\rho_{eq}}{d\varepsilon} = M_{II}(\dot{\varepsilon}, T) - k_a(\dot{\varepsilon}, T)\rho_{eq} \quad \text{Equation 2.4}$$

Avec  $M_{II}$  le facteur de multiplication des dislocations,  $k_a$  le facteur d'annihilation des dislocations et  $\varepsilon$  la déformation équivalente. Il a été montré dans de précédents travaux que  $M_{II}$  ne dépendait ni de la température (J. Klepaczk 1975) ni, dans le cas du tantale pur, de la vitesse de déformation (Buy 1996).  $M_{II}$  peut donc être considéré comme une constante. Le facteur d'annihilation s'écrit lui sous la forme (Houillon 2009) :

$$k_a(\dot{\varepsilon}, T) = k_{a,0} \left( \frac{\dot{\varepsilon}}{\dot{\varepsilon}_k} \right)^{-2m_k T} \quad \text{Equation 2.5}$$

Où  $k_{a,0}$ ,  $m_k$  et  $\dot{\varepsilon}_k$  sont des constantes qui ont été identifiées (Tableau 2-3) dans les travaux de thèse de M. Houillon (Houillon 2009).

**Tableau 2-3. Valeurs des paramètres de la loi d'évolution de la densité de dislocations** (Houillon 2009)

$M_{II}$	$k_{a,0}$	$m_k$ (K <sup>-1</sup> )	$\dot{\varepsilon}_k$ (s <sup>-1</sup> )
21	30	-0,00023	1,5 x 10 <sup>6</sup>

Usuellement, la contrainte mécanique due aux dislocations mobiles est exprimée par la relation :

$$\sigma = \alpha M \mu b \sqrt{\rho} \quad \text{Equation 2.6}$$

Avec  $\alpha$  un facteur dépendant du mode de sollicitation (compris entre 0,2 et 0,5),  $M$  le facteur de Taylor moyen pour toutes les orientations cristallographiques (autour de 3 pour un métal cubique centré non texturé),  $\mu$  le module de cisaillement,  $b$  la norme du vecteur de Burgers et  $\rho$  la densité de dislocations équivalente. Par analogie, la contrainte athermique du modèle ici présenté s'écrit :

$$\sigma_{ath} = \sigma_a \sqrt{\rho_{eq}} \quad \text{Equation 2.7}$$

Où  $\sigma_a$  est la constante athermique du modèle, homogène à une contrainte. La valeur de 120 MPa a été identifiée dans (Houillon 2009) (Tableau 2-4). Par comparaison des équations 2.6 et 2.7, cette constante peut s'écrire :

$$\sigma_a = \alpha M \mu b \sqrt{\rho_0} \quad \text{Equation 2.8}$$

Une fois cette constante athermique identifiée, on pourra estimer une valeur de la densité de dislocations équivalente du matériau recristallisé.

La contrainte équivalente effective s'exprime par (Buy 1996) :

$$\sigma^* = \sigma_0^* \left[ 1 - \left( \frac{kT}{\Delta G_0} \ln \left( \frac{\dot{\varepsilon}_0}{\dot{\varepsilon}} \right) \right)^{\frac{1}{q}} \right]^{\frac{1}{p}} \quad \text{Equation 2.9}$$

Avec  $\sigma_0^*$  la contrainte effective à 0 K,  $k$  la constante de Boltzmann,  $T$  la température en K,  $\Delta G_0$  l'énergie d'activation du franchissement des obstacles par les dislocations à 0 K et  $\dot{\varepsilon}_0$  une constante du modèle. Les paramètres  $p$  et  $q$  traduisent les effets de géométrie des obstacles à franchir. Le tableau 2-4 regroupe les valeurs de tous ces paramètres identifiés dans les travaux de M. Houillon. Cette identification a été réalisée par minimisation globale de l'erreur entre les contraintes obtenues par la loi de comportement (comportant également l'écroutissage) et un jeu de courbes de comportement expérimentales issu d'essais de compression uniaxiale et de torsion à différentes vitesses de déformation équivalentes à température ambiante. Les paramètres  $p$  et  $q$  ont été fixés en s'appuyant sur les valeurs disponibles dans la littérature (Buy 1996).

**Tableau 2-4. Valeur des paramètres de la loi représentant la contrainte dans le tantale** (Buy 1996; Houillon 2009)

$\sigma_a$ (MPa)	$\sigma_0^*$ (MPa)	$\Delta G_0$ (J)	$\dot{\varepsilon}_0$ ( $s^{-1}$ )	$p$	$q$
120	870	$1 \times 10^{-19}$	$1,5 \times 10^6$	1	2

Au final, la loi décrivant la contrainte équivalente en fonction de paramètres microstructuraux et thermomécaniques s'écrit :

$$\sigma = \sigma_a \sqrt{\rho_{eq}} + \sigma_0^* \left[ 1 - \left( \frac{kT}{\Delta G_0} \ln \left( \frac{\dot{\varepsilon}_0}{\dot{\varepsilon}} \right) \right)^{\frac{1}{q}} \right]^{\frac{1}{p}} \quad \text{Equation 2.10}$$

Les paramètres de la loi d'évolution de la densité de dislocations (équations 2.4 et 2.5) s'ajoutant à ceux de cette loi d'évolution de la contrainte, la modélisation du comportement plastique du tantale requiert donc la détermination de 10 paramètres :  $\sigma_a$ ,  $\sigma_0^*$ ,  $\Delta G_0$ ,  $\dot{\varepsilon}_0$ ,  $p$ ,  $q$ ,  $M_{II}$ ,  $k_{a,0}$ ,  $m_k$  et  $\dot{\varepsilon}_k$ .

Cette loi de comportement est théoriquement définie jusqu'à une vitesse de déformation équivalente maximale  $\dot{\varepsilon}_0$  (ou  $\dot{\varepsilon}_k$  si  $\dot{\varepsilon}_k < \dot{\varepsilon}_0$ ). Cependant, elle a uniquement été validée à température ambiante pour des vitesses de déformation équivalentes comprises entre  $10^{-4}$  et  $10^2 s^{-1}$  dans les travaux de M. Houillon et de F. Buy (Buy 1996; Houillon 2009).

### B. DETERMINATION DES PARAMETRES DU MODELE

Les 10 paramètres du modèle de comportement ont été identifiés à partir d'essais de compression (Annexe A1) et de torsion sur tube (Houillon 2009). Les contraintes élastiques des essais de torsion ont été directement extraites des courbes contrainte-déformation présentées dans (Houillon 2009). L'analyse des résultats des essais de compression n'est pas aussi directe. En effet, les courbes force-déplacement des ces essais présentent un pic à la transition élasto-plastique qui nécessitent de faire un choix dans la définition de la contrainte élastique et dans la nature du pic observé. Est-ce un durcissement dû à la présence d'atomes en solution au voisinage des dislocations, ou bien un adoucissement dû à une instabilité géométrique ? On fait ici le choix de considérer un adoucissement car il apparaît sur la courbe force-déplacement (figure 2-5) un point d'inflexion au cours de la déformation plastique qui, sinon, serait signe de deux régime d'écrouissage distincts. Nous avons donc corrigé chaque courbe de compression par la méthode suivante (illustrée sur la figure 2-5):

1. On considère que seul le début de la partie plastique de la courbe est influencé par l'adoucissement de la transition élasto-plastique (jusqu'au point d'inflexion).
2. On repère le point d'inflexion (partie plastique de la courbe expérimentale approchée par un polynôme de degré 3 puis celui-ci est dérivé deux fois).
3. On prolonge ensuite la courbe force-déplacement du point d'inflexion à la partie élastique en considérant une évolution linéaire avec une dérivée connue au point d'inflexion.

En traitant les courbes de compression de cette manière, on réalise également un lissage des résultats qui nous servira par la suite dans l'optimisation des paramètres du modèle de comportement. L'ensemble des limites élastiques de ces essais de compression et de torsion réalisés à température ambiante sont conformes aux données récoltées dans la littérature (figure 2-6).

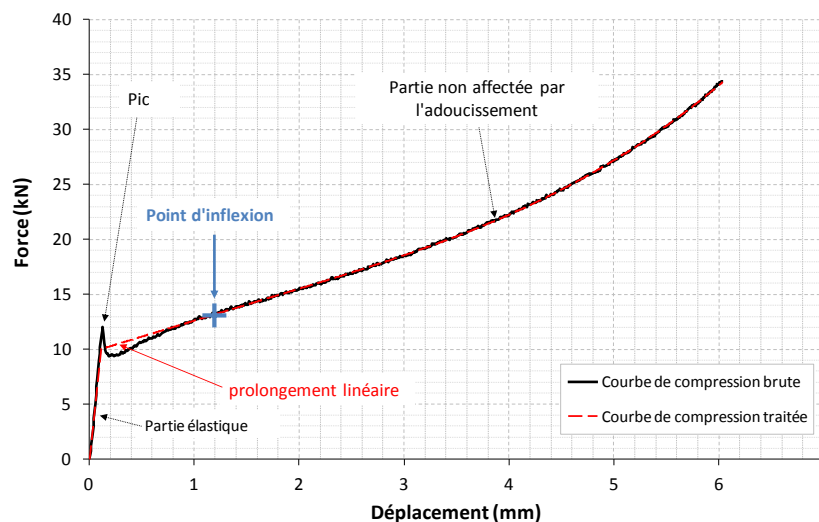


Figure 2-5. Méthode de traitement des courbes force-déplacement et de détermination de la limite élastique des essais de compression réalisés dans (Houillon 2009)

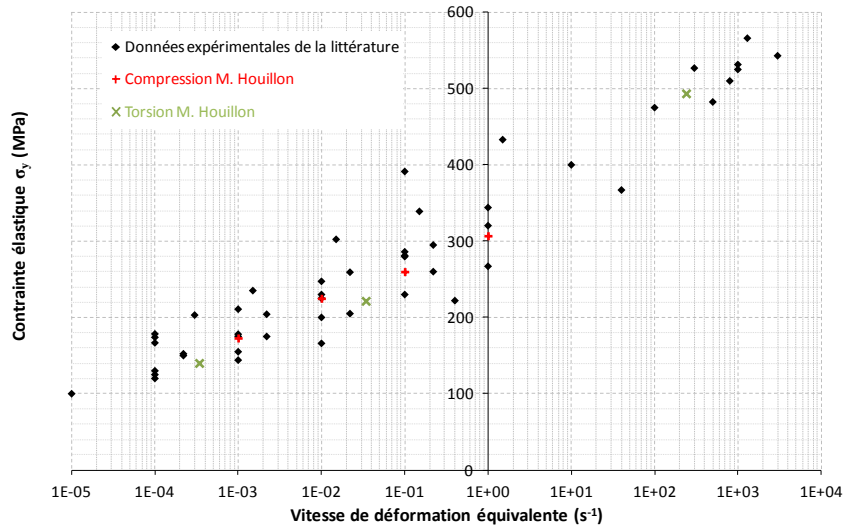


Figure 2-6. Comparaison des contraintes d'écoulement obtenues après analyse des essais de compression et de torsion réalisés lors des travaux de M. Houillon avec les données de la littérature

Ce jeu de paramètres donne une bonne estimation de la contrainte d'écoulement à température ambiante (figure 2-7.b) mais rend moins bien compte des effets de température. D'une part, il ne permet pas de restituer correctement l'évolution de la contrainte avec la température pour une vitesse de déformation donnée (figure 2-7.a), de sorte que les températures auxquelles le palier athermique est atteint sont sous-estimées. D'autre part, la contrainte d'écoulement à 900K semble être bien restituée par le modèle seulement pour les fortes vitesses de déformations (figure 2-7.b).

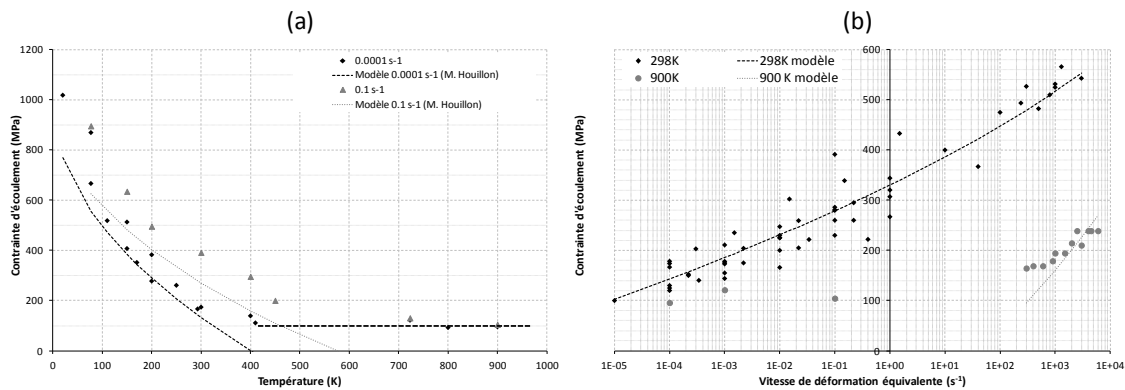


Figure 2-7. Modélisation de la contrainte d'écoulement à partir des paramètres identifiés dans (Houillon 2009)

(a) fonction de la température (b) fonction de la vitesse de déformation

Nous nous proposons donc d'améliorer la modélisation du comportement plastique du tantale en prenant en compte dans l'identification des paramètres du modèle les données de la littérature. Ce travail permettra de valider que la loi utilisée permet de restituer un comportement mécanique moyen du tantale pur quel que soit sa provenance, et de mieux prendre en compte les effets de température. La prise en compte de ces effets thermiques pourra se révéler utile lors de la simulation de procédés de mise en forme en grande déformation induisant un auto-échauffement de la matière.

Nous allons tout d'abord nous intéresser à la transition élasto-plastique. La densité de dislocations équivalente relative est égale à 1, la déformation plastique macroscopique n'ayant pas encore débuté. La relation 2.10 devient :

$$\sigma_y = \sigma_a + \sigma_0^* \left[ 1 - \left( \frac{kT}{\Delta G_0} \ln \left( \frac{\dot{\epsilon}_0}{\dot{\epsilon}} \right) \right)^{\frac{1}{q}} \right]^{\frac{1}{p}} \quad \text{Equation 2.11}$$

A partir des données expérimentales de la littérature présentées sur la figure 2.1, on voit que la contrainte sur le plateau athermique est environ de 100 MPa. Ainsi, la contrainte effective étant nulle sur ce plateau, on fixe la valeur de la constante athermique :

$$\sigma_y = \sigma_a = 100 \text{ MPa}$$

En utilisant cette valeur dans la relation 2.8, on obtient une estimation de la densité de dislocations équivalente du tantale recristallisé (pour  $\alpha = 0,28$  en compression (Farré & Buy 1999),  $b = 2,86 \times 10^{-10} \text{ m}$ ,  $\mu = 69 \text{ GPa}$  et  $M \approx 3$ ) :

$$\rho_0 \approx 3,5 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$$

La prochaine étape va consister à déterminer les paramètres  $\Delta G_0$  et  $\dot{\epsilon}_0$  à partir des températures de début du plateau athermique pour plusieurs vitesses de déformation. A la transition entre la zone thermiquement activée et le plateau athermique, la contrainte d'écoulement est égale à la constante athermique. Ainsi,

$$\sigma_0^* \left[ 1 - \left( \frac{kT}{\Delta G_0} \ln \left( \frac{\dot{\epsilon}_0}{\dot{\epsilon}} \right) \right)^{\frac{1}{q}} \right]^{\frac{1}{p}} = 0 \quad \text{Equation 2.12}$$

D'où,

$$\frac{kT_{ath,i}}{\Delta G_0} \ln \left( \frac{\dot{\epsilon}_0}{\dot{\epsilon}_i} \right) = 1 \quad \text{Equation 2.13}$$

Avec  $T_{ath,i}$  la température (en K) à laquelle est atteint le plateau athermique pour une vitesse de déformation  $\dot{\epsilon}_i$ . A partir des données estimées du tableau 2-2, on obtient :

$$\begin{aligned} \Delta G_0 &= 1,28 \times 10^{-19} \text{ J/at} \\ \dot{\epsilon}_0 &= 2,5 \times 10^5 \text{ s}^{-1} \end{aligned}$$

On peut, à partir de ces valeurs, construire la courbe donnant la température du palier athermique en fonction de la vitesse de déformation (figure 2-8). Cette température augmente lorsque la vitesse de déformation augmente et on remarque qu'à température ambiante la vitesse de déformation pour atteindre le plateau athermique est très faible ( $< 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ ). Lorsque l'on prolonge avec la loi de Norton-Hoff (équation 2.1) les données obtenues à 900 K pour les hautes vitesses (figure 2-1) vers les vitesses plus faibles, on atteint le palier athermique à environ  $10 \text{ s}^{-1}$ . Cette valeur correspond bien à la valeur prédite à partir de la courbe de la figure 2-8 (environ  $8,5 \text{ s}^{-1}$ ).



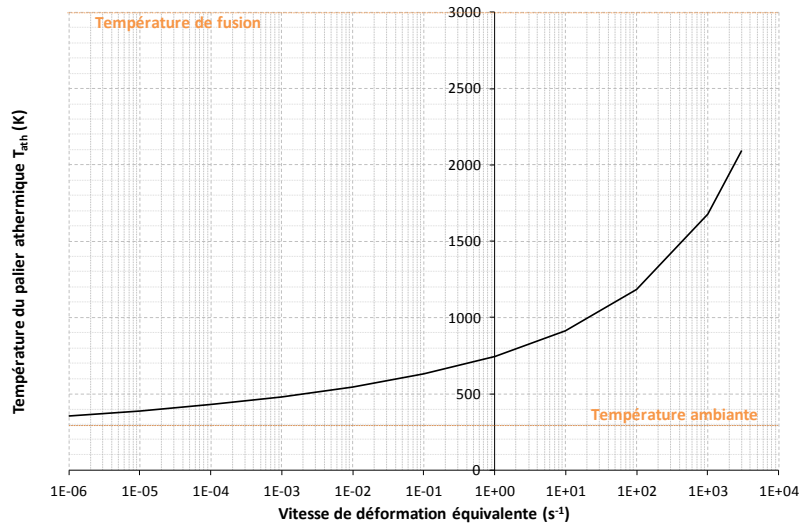


Figure 2-8. Température du palier athermique en fonction de la vitesse de déformation équivalente

Une étude récente (Park et al. 2011) utilise la même modélisation de la contrainte effective. Les paramètres sont en revanche identifiés à partir des données en température et non en vitesse de déformation. La différence principale avec le jeu de paramètres établi par M. Houillon réside dans les valeurs de  $p$  et  $q$ . Les résultats obtenus montrent une bonne restitution de la contrainte effective en fonction de la température avec des valeurs de  $p = 0,3$  et  $q = 1$ . Plusieurs valeurs de ces deux paramètres existant dans la littérature, nous les incluons dans les paramètres du modèle qui restent à identifier.

Pour ce qui nous concerne  $q$ ,  $p$  et  $\sigma_0^*$  sont donc les trois paramètres variables dans l'identification du modèle de comportement pour représenter la contrainte élastique. Nous avons choisi d'optimiser la valeur de ces paramètres afin de minimiser, au sens des moindres carrés, l'écart entre l'ensemble des limites élastiques expérimentales regroupées sur la figure 2-1 et le modèle. Après optimisation, on obtient :

$$\begin{aligned}\sigma_0^* &= 1047 \text{ MPa} \\ p &= 0,47 \\ q &= 1,44\end{aligned}$$

Avec ce nouveau jeu de paramètres, on obtient les résultats présentés sur la figure 2-9. Tout d'abord, ces nouveaux paramètres permettent de mieux rendre compte de l'allure de l'évolution de la contrainte effective avec la température quelle que soit la vitesse de déformation (figure 2-9.a), même si les niveaux de contrainte ne sont pas respectés. Sur la figure 2-9.b, la contrainte d'écoulement calculée est correcte, en fonction de la vitesse de déformation et cela pour les deux températures (température ambiante et 900 K). Le nouveau jeu de paramètres (tableau 2-5) semble être un bon compromis entre la modélisation des effets de température et de vitesse de déformation et ceci pour des données provenant de différentes études sur du tantale pur avec des niveaux d'impuretés potentiellement différents.

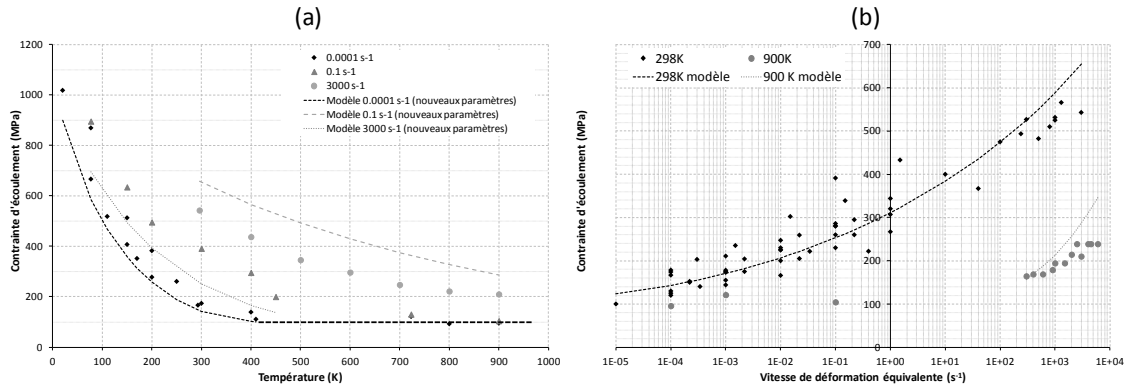


Figure 2-9. Modélisation de la contrainte d'écoulement à partir des paramètres réidentifiés

(a) fonction de la température (b) fonction de la vitesse de déformation

Tableau 2-5. Nouveau jeu de paramètres pour la loi d'évolution de la contrainte utilisée dans le modèle de comportement du tantale pur

Paramètres de la loi « contrainte »	Nouvelles valeurs	Anciennes valeurs
$\sigma_a$ (MPa)	100	120
$\sigma_0^*$ (MPa)	1047	870
$p$	0,47	1
$q$	1,44	2
$\Delta G_0$ (J/at)	$1,28 \times 10^{-19}$	$1 \times 10^{-19}$
$\dot{\varepsilon}_0$ (s <sup>-1</sup> )	$2,5 \times 10^5$	$1,5 \times 10^6$

La loi décrivant la contrainte d'écoulement à la transition élasto-plastique étant maintenant établie, nous allons nous concentrer sur l'écrouissage et procéder à l'identification des paramètres des lois 2.4 et 2.5. Pour cela, nous allons nous baser sur les essais de compression réalisés dans la thèse de M. Houillon et décrits dans l'annexe A1. Sur les éprouvettes déformées, on observe une hétérogénéité de la dureté dans la hauteur de l'échantillon avec une dureté plus élevée au centre qu'au niveau des surfaces en contact avec les outils. Le frottement est responsable d'hétérogénéités de déformation non négligeables. De plus, ces essais ont été réalisés à vitesse de traverse constante, ce qui signifie que la vitesse de déformation moyenne est variable au cours du temps. La conversion des courbes force-déplacement en courbe contrainte-déformation à vitesse de déformation fixée serait donc incorrecte. Nous avons donc identifié les paramètres de la loi d'écrouissage par analyse inverse en utilisant le module d'optimisation du code utilisant la méthode des éléments finis Forge 2011®.

Dans un premier temps, le facteur d'annihilation présentant lui aussi un palier athermique, nous avons décidé de modifier la forme de la loi du facteur d'annihilation par une autre forme de loi déjà utilisée pour le tantale (Farré et al. 2001). Cette nouvelle loi ressemble fortement à celle de la contrainte d'écoulement :

$$\begin{cases} k_a(\dot{\varepsilon}, T) = k_{a,ath} + k_a^* \left( 1 - \frac{kT}{\Delta G_k} \ln \left( \frac{\dot{\varepsilon}_k}{\dot{\varepsilon}} \right) \right) & \text{si } \frac{kT}{\Delta G_k} \ln \left( \frac{\dot{\varepsilon}_k}{\dot{\varepsilon}} \right) \leq 1 \\ k_a(\dot{\varepsilon}, T) = k_{a,ath} & \text{sinon} \end{cases} \quad \text{Equation 2.14}$$

Peu de données existent sur le facteur d'annihilation pour calibrer cette loi, et notamment pour calibrer la dépendance à la température. Selon (Farré et al. 2001), le plateau athermique à température ambiante concerne les vitesses inférieures à  $5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$  (N.B. cette

loi ne retranscrit pas correctement l'effet de la température. Le comportement mécanique étant caractérisé à température ambiante, nous choisissons tout de même de l'utiliser).

Par ailleurs, le frottement en compression est évalué approximativement en comparant le bombé expérimental à un bombé obtenu par simulation numérique de l'essai sous Forge 2011®. On suppose ici que le bombé est uniquement dû à la géométrie du pion et au frottement. Par cette méthode, le coefficient de frottement (loi de Tresca, 2.15) entre le pion et les outils est estimé à 0,4 (comme évoqué dans (Houillon 2009)).

**Remarque – Loi de frottement de Tresca**

$$\tau_c = \bar{m} \frac{\sigma_y}{\sqrt{3}} \quad \text{avec} \quad 0 \leq \bar{m} \leq 1$$

Equation 2.15

Avec  $\tau_c$  la contrainte de cisaillement critique pour laquelle on déclenche le glissement relatif d'un corps par rapport à l'autre,  $\bar{m}$  le coefficient de frottement et  $\sigma_y$  la contrainte d'écoulement du corps le plus mou.

L'optimisation consiste à déterminer les paramètres de la loi d'écrouissage en minimisant l'écart entre les courbes force-déplacement expérimentales et numériques. Le module d'optimisation de Forge 2011® se base sur un algorithme génétique pour déterminer les paramètres optimaux. La stratégie employée a été d'identifier en premier les coefficients  $M_{II}$  et  $k_{a,ath}$  à partir de l'essai de compression réalisé à  $0,01 \text{ mm.s}^{-1}$ . On peut estimer la vitesse de déformation au début de l'essai comme étant de l'ordre de  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$  ( $\dot{\epsilon}_{initial} \approx V_{initiale}/h_{initiale}$ ) et ainsi considérer cet essai comme étant sur le palier athermique du facteur d'annihilation. Après optimisation sur cet essai, la courbe force déplacement est très bien reproduite numériquement (figure 2-10) avec les paramètres suivant :

$$\begin{aligned} M_{II} &= 24,5 \\ k_{a,ath} &= 1,6 \end{aligned}$$

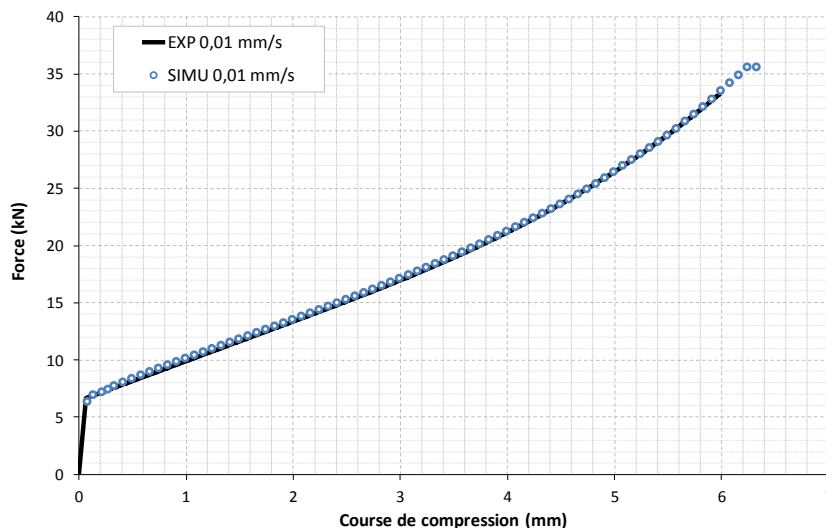


Figure 2-10. Comparaison de la simulation de l'essai de compression à  $0,01 \text{ mm.s}^{-1}$  avec les données expérimentales

$k_a^*$  et  $\dot{\epsilon}_k$  sont ensuite optimisés sur un essai hors du palier athermique. En l'absence de données expérimentales suffisantes, le paramètre d'activation pour l'annihilation des disloca-

tions  $\Delta G_k$  est choisi égal à  $1 \times 10^{-19}$  J/at (ordre de grandeur de  $\Delta G_0$ , paramètre d'activation pour le franchissement des obstacles par les dislocations déterminé précédemment). En optimisant sur l'essai de compression à  $1 \text{ mm.s}^{-1}$  ( $\dot{\varepsilon}_{\text{initial}} \approx 10^{-1} \text{ s}^{-1}$ ), on obtient les paramètres suivant :

$$k_a^* = 11$$

$$\dot{\varepsilon}_k = 2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$$

Pour cet essai à  $1 \text{ mm.s}^{-1}$ , la courbe numérique suit à nouveau bien la courbe expérimentale (figure 2-11). Mais de manière plus intéressante, les essais à  $0,1 \text{ mm.s}^{-1}$  et  $10 \text{ mm.s}^{-1}$  (figure 2-12) qui n'ont pas été utilisés pour l'identification des paramètres, révèlent aussi un bon accord entre simulation et données expérimentales. On peut noter que pour la vitesse la plus rapide, l'écart est toutefois plus important. Ceci peut être dû au fait qu'à cette vitesse l'autoéchauffement (pris en compte dans le calcul par la méthode des éléments finis) n'est pas négligeable et que la loi d'écrouissage est encore insuffisamment précise dans sa prise en compte des effets de température.

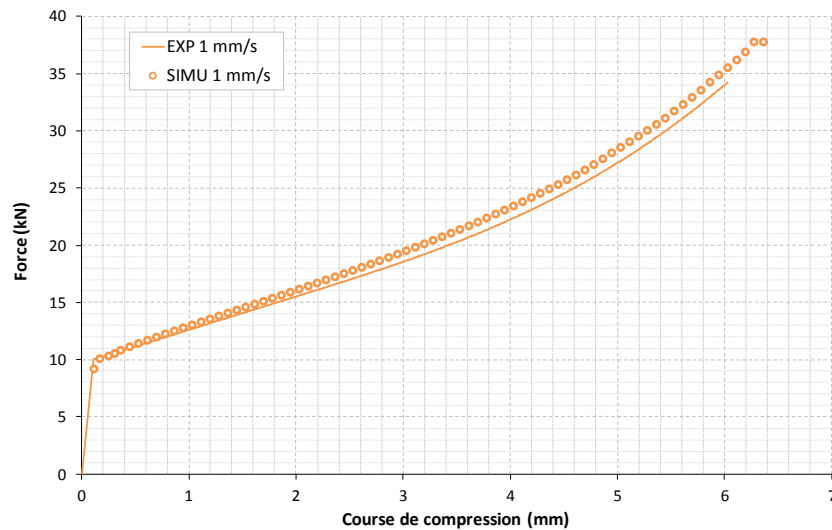


Figure 2-11. Comparaison de la simulation de l'essai de compression à  $1 \text{ mm.s}^{-1}$  avec les données expérimentales

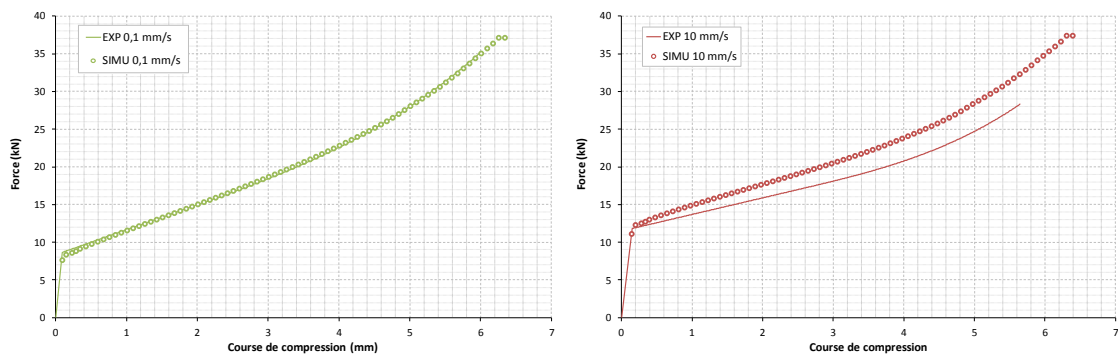


Figure 2-12. Validation des paramètres identifiés par comparaison des simulations d'essais de compression (non utilisés pour l'identification) avec les données expérimentales

Le nouveau jeu de paramètres ainsi identifié a également été utilisé pour modéliser des essais de torsion sur tube réalisés à la fois dans le régime statique et dans le régime dynamique (Houillon 2009). La figure 2-13 montre que le modèle surestime légèrement la con-

trainte en torsion et cela pour toutes les vitesses de déformation. Néanmoins, le résultat apparaît satisfaisant et montre que la modélisation permet de reproduire le comportement mécanique pour différents modes de sollicitation. Il faut rappeler en outre que des essais en torsion mènent généralement à des contraintes d'écoulement inférieures à celles mesurées en compression, et ceci indépendamment du cas particulier du tantale (Jonhson & Cook 1983; Jaoul 2008).

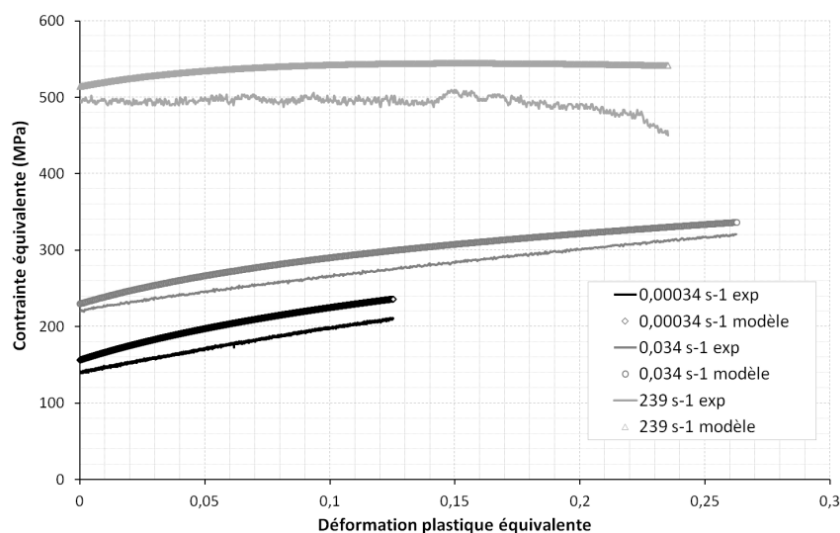


Figure 2-13. Modélisation du comportement mécanique en torsion (essais de torsion sur tubes (Houillon 2009))

### En résumé

A partir de données de la littérature et d'essais de compression uniaxiale (Houillon 2009), nous avons fait plusieurs observations sur le comportement plastique du tantale pur. Ce matériau est très visqueux à température ambiante avec un coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation de 0,08. La contrainte d'écoulement à la transition élasto-plastique est typiquement d'environ 220 MPa à  $0,01 \text{ s}^{-1}$  et augmente d'environ 50 MPa par décade lorsque la vitesse de déformation augmente. On retrouve également l'équivalence vitesse de déformation-température classique puisque la contrainte d'écoulement diminue lorsque la température augmente. Le tantale pur présente, à vitesse de déformation constante, une température au delà de laquelle la contrainte atteint un seuil de 100 MPa et n'évolue plus. Ce phénomène est relié au fait qu'à partir d'une certaine température, le franchissement des obstacles par les dislocations est très facile et ne dépend plus de la température si celle-ci augmente. La température de ce plateau athermique augmente avec la vitesse de déformation.

L'écrouissage du tantale pur est lui aussi un peu particulier. En effet, l'augmentation de la vitesse de déformation va diminuer l'écrouissage. L'effet de la température sur l'écrouissage est moins clair. On peut tout de même penser que l'écrouissage diminue lorsque la température augmente. Au cours de la déformation, en fonction de la température et de la vitesse de déformation, le tantale est sujet à la restauration dynamique. Ce phénomène lié à la déformation correspond à une annihilation et une réorganisation des dislocations en cellules. Plus la déformation augmente et mieux ces cellules seront définies jusqu'à atteindre un régime pour lequel les propriétés mécaniques du tantale pur saturent. On peut notamment atteindre un écrouissage nul aux hautes vitesses de déformation.

A partir de ces observations et des données sur le comportement plastique du tantale, un modèle de comportement basé sur une densité de dislocations équivalente a été réidentifié. Ce travail a permis d'améliorer la modélisation du comportement mécanique du tantale pur, notamment dans la prise en compte de la température par rapport aux études déjà réalisées au CEA DAM Valduc. Le nouveau jeu de paramètres est récapitulé dans le tableau 2-6.

**Tableau 2-6. Nouveau jeu de paramètres du modèle de comportement pour le tantale pur**

	Paramètre	Valeur réidentifiée	Anciennes valeurs
Contrainte d'écoulement	$\sigma_a$ (MPa)	100	120
	$\sigma_0^*$ (MPa)	1047	870
	$p$	0,47	1
	$q$	1,44	2
	$\Delta G_0$ (J/at)	$1,28 \times 10^{-19}$	$1 \times 10^{-19}$
	$\dot{\varepsilon}_0$ (s <sup>-1</sup> )	$2,5 \times 10^5$	$1,5 \times 10^6$
Ecrouissage	$M_{II}$	24,5	21
	$k_{a,ath}$	1,6	- (loi différente)
	$k_a^*$	11	- (loi différente)
	$\Delta G_k$ (J/at)	$1 \times 10^{-19}$	- (loi différente)
	$\dot{\varepsilon}_k$ (s <sup>-1</sup> )	$2 \times 10^8$	$1,5 \times 10^6$

Grâce à cette loi de comportement, nous disposons d'un moyen pour accéder à une densité de dislocations équivalente à partir de la mesure d'une contrainte. La suite de cette partie va être consacrée à établir une mesure expérimentale qui, grâce à cette loi, permettra d'accéder à la densité de dislocations. Le but final est d'obtenir une description de l'état déformé pour ensuite modéliser la recristallisation statique et la croissance de grains.

## II. EVALUATION DE LA DENSITE DE DISLOCATIONS EQUIVALENTE PAR MESURE DE MICRODURETE VICKERS

Accéder expérimentalement à la densité de dislocations reste encore aujourd'hui très difficile. Les méthodes les plus courantes que sont la diffraction des rayons X et la microscopie électronique en transmission requièrent du matériel performant ainsi qu'une grande expertise pour extraire des mesures une densité de dislocations. Afin de rendre cette mesure plus simple et plus systématique dans le cas de la caractérisation d'une pièce industrielle, une relation entre microdureté Vickers (avec une charge de 300 gf) et densité de dislocations a été établie par (Houillon 2009). Cette relation est basée sur le lien qui existe entre la dureté Vickers ( $HV$  en MPa) et la contrainte d'écoulement  $\sigma_y$  (en MPa) à travers la relation de Tabor (Tabor 1951):

$$HV = c\sigma_y \quad \text{Equation 2.16}$$

Avec  $c$  la constante de Tabor ayant une valeur proche de 3 pour les métaux usuels. En associant à cette relation de Tabor, la loi de comportement basée sur la densité de dislocations

équivalente, on obtient une estimation de la densité de dislocations équivalente à partir d'une mesure de dureté Vickers. Pour établir cette relation, l'indentation Vickers a été simulée numériquement à l'aide du code Forge 2011®. La dureté numérique résultant de la loi de comportement basée sur la densité de dislocations équivalente a ensuite été mise en relation avec la densité de dislocations initiale de l'échantillon numérique et ceci pour plusieurs valeurs initiales de la densité de dislocations (figure 2-14).

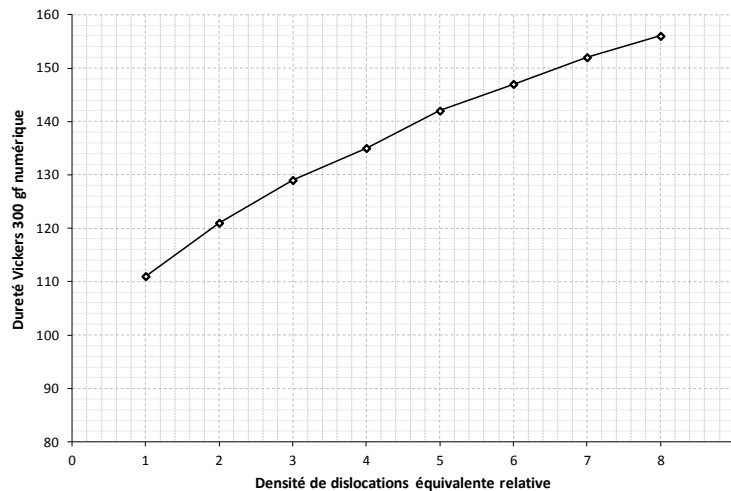


Figure 2-14. Relation Dureté Vickers/densité de dislocations équivalente établie dans les travaux de (Houillon 2009)

Cependant, on remarque que la dureté du tantale pur recristallisé (densité de dislocations équivalente de 1) prédite par cette relation est trop élevée par rapport à la dureté expérimentale (environ 82 HV0,3). De plus, lors de la détermination de cette relation, la cinématique réelle de l'indentation Vickers n'a pas été prise en compte. En effet, lors d'une mesure de dureté selon la norme ISO 6507-1, la mise en charge est instantanée, puis cette charge est maintenue pendant un temps compris entre 10 et 15 secondes. Dans l'analyse qui a été faite dans (Houillon 2009) pour estimer la densité de dislocations, ce temps de maintien n'a pas été pris en compte. De plus, la vitesse de l'indenteur a été considérée comme constante au cours de la mise en charge, avec une valeur de  $33 \mu\text{m.s}^{-1}$  qui paraît éloignée d'une mise en charge instantanée. Dans la suite de cette partie, nous débuterons par une brève description de l'indentation Vickers et des points importants à retenir lorsque l'on souhaite utiliser un tel essai. Puis, nous déterminerons une nouvelle relation entre dureté Vickers (300gf) et densité de dislocations équivalente tenant compte de la cinématique réelle de l'indentation Vickers.

### 1. La microdureté Vickers du tantale pur recristallisé

L'essai d'indentation consiste à faire pénétrer un indenteur dans un matériau sous une charge constante donnée. La dureté du matériau est calculée à partir de la taille de l'empreinte laissée par l'indenteur dans le matériau après la décharge. Le terme de microdureté (ou microindentation) renvoie à des valeurs de charge comprises entre 0.5 gf et 2 kgf. Il existe différentes échelles de dureté en fonction de la géométrie de l'indenteur. Il peut être sphérique (Brinell), conique, pyramidal à base triangle. Dans le cas de la dureté Vickers,

l'indenteur est une pyramide à base carrée en diamant. L'angle entre deux faces opposées de la pyramide est de  $136^\circ$  (figure 2-15). L'essai d'indentation Vickers suit la norme ISO 6507-1.

#### A. CALCUL DE LA DURETE

Dans le cas de l'indentation Vickers, l'empreinte laissée par l'indenteur est un carré (ou plus généralement un losange dans le cas d'une déformation anisotrope). On caractérise donc cette empreinte carrée par la longueur de sa diagonale (figure 2-15). Dans le cas où les deux diagonales ne sont pas identiques on donne une valeur de diagonale équivalente en faisant la moyenne des longueurs des deux diagonales.

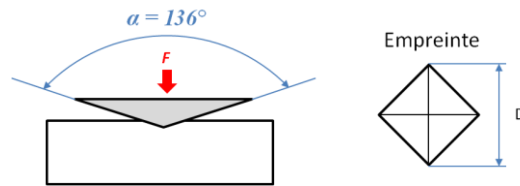


Figure 2-15. Géométrie de l'essai de dureté Vickers

A partir de la force appliquée, de la taille de l'empreinte et de la géométrie de l'indenteur, on calcule la dureté Vickers du matériau par la formule suivante :

$$HV = 2 \cdot \sin\left(\frac{136^\circ}{2}\right) \cdot \frac{F}{D^2} \quad \text{Equation 2.17}$$

Avec  $HV$  la dureté Vickers,  $F$  la charge appliquée (kgf ou N) et  $D$  la diagonale de l'empreinte (mm). La dureté est homogène à une contrainte, elle peut être exprimée en MPa si la force est exprimée en N.

#### B. CINEMATIQUE DE L'ESSAI DE DURETE

La microdureté Vickers est réalisée avec un microduromètre Buehler MicroMET 5124. Cette machine a deux cinématiques d'indentation suivant la charge employée. On sépare la cinématique des charges strictement supérieures à 25 gf à celle des charges inférieures ou égales à 25 gf.

Dans le cas d'une charge de 300 gf, la mise en charge est réalisée par des masses mortes. L'indenteur approche la surface à une vitesse d'environ  $60 \mu\text{m.s}^{-1}$  (la distance d'approche est calibrée par rapport à la mise au point réalisée sur la surface de l'échantillon). Une fois la surface atteinte, la mise en charge est réalisée à effort constant  $F$ . La vitesse d'indentation est alors libre. L'effort  $F$  est maintenu pendant un temps  $t$ , appelé temps de maintien (figure 2-16). Selon la norme, le temps de maintien est compris entre 10 et 15 s. Le microduromètre permet de faire varier ce temps de maintien entre 5 et 99 s.

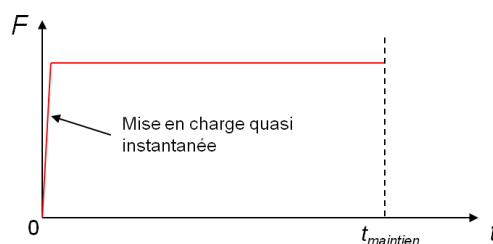


Figure 2-16. Evolution de la charge au cours d'une indentation Vickers réalisée avec une masse morte ( $F > 25$  gf)



### C. NOMENCLATURE

La dureté Vickers a une nomenclature bien précise selon la norme ISO 6507-1.

$$XXX \text{ HV } F (/t)$$

Avec  $XXX$  la valeur de la dureté Vickers,  $F$  la valeur de la charge utilisée en kgf et  $t$  la valeur du temps de maintien (si hors de la plage préconisée dans la norme).

#### Exemple

Tantale recristallisé, charge de 300 gf avec un temps de maintien de 5 s

$$87 \text{ HV}_{0,3} / 5$$

### D. INFLUENCE DU TEMPS DE MAINTIEN SUR LA MICRODURETE DU TANTALE PUR RECRISTALLISE

La charge de référence choisie pour cette étude est 300 gf, ce qui correspond à un effort de 2,94 N. Pour cette charge et pour un temps de maintien de 5 s, la dureté du tantale pur recristallisé est de 87 HV<sub>0,3</sub> / 5. La figure 2-17 montre que ce temps de maintien a une influence significative sur la valeur de microdureté Vickers du tantale pur recristallisé. La dureté passe de 87 HV<sub>0,3</sub> / 5 à 77 HV<sub>0,3</sub> / 99. On remarque cependant l'existence d'un palier de dureté, à partir de 20 s. Cette forte dépendance au temps de maintien de la charge peut être attribuée à la forte viscosité du tantale à température ambiante. Lorsqu'on se trouve dans les conditions de la norme (entre 10 et 15 secondes), ce palier n'est pas encore atteint. Les normes sont généralement définies pour des matériaux très usités comme les aciers. Ces matériaux étant peu visqueux à température ambiante, un temps de maintien de 10 s environ doit être suffisant pour atteindre le palier observé pour le tantale au dessus de 20 s. Cette norme ne convient donc pas bien au tantale pur recristallisé pour une charge de 300 gf.

Les dépendances de la dureté Vickers à la charge de l'essai et à la vitesse d'indentation sont détaillées dans l'annexe A4.

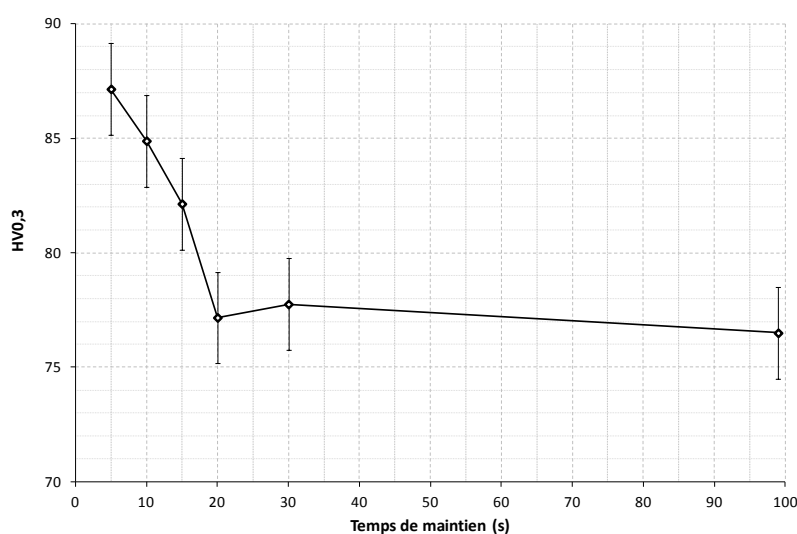


Figure 2-17. Influence du temps de maintien de la charge sur la microdureté Vickers du tantale pur (300 gf)

## 2. Détermination de la relation dureté Vickers-densité de dislocations équivalente

Compte tenu des résultats obtenus en simulation de l'indentation Vickers (annexe A5), il apparaît à ce stade difficile de développer la stratégie initialement prévue pour déterminer la relation entre dureté et densité de dislocations équivalente. En effet, les résultats de l'indentation numérique ne montrent pas un réel accord avec les données expérimentales même si les dépendances à la charge, au temps de maintien et à la vitesse d'indentation sont respectées. Ces simulations d'indentation ont en plus été réalisées à vitesse d'indentation constante, la cinématique réelle d'un essai de microdureté avec une charge de 300 gf s'avérant encore un verrou non résolu à ce stade.

La solution envisagée pour contourner ce problème de simulation numérique de l'indentation consiste à établir une loi semi-expérimentale/semi-numérique à partir d'essais mécaniques réalisés sur du tantale pur et qui sont plus facilement simulables avec le logiciel Forge 2011®. Dans un premier temps, dans un pion utilisé pour déterminer le comportement mécanique en compression uniaxiale réalisée à  $0,1 \text{ mm.s}^{-1}$ , on sait qu'il existe des gradients de déformation et donc de densité de dislocations. On réalise donc une série de mesures de dureté Vickers 300 gf le long de la hauteur de ce pion (figure 2-18.b) pour un temps de maintien de 5 s et un autre de 30 s. Ensuite, on utilise la simulation numérique de cet essai réalisée avec la loi de comportement basée sur la densité de dislocations équivalente pour en tirer les densités de dislocations équivalentes le long de cette même hauteur (figure 2-18.a). Ces deux grandeurs sont ensuite reliées par la position dans la hauteur du pion, ce qui nous donne une relation entre HV0,3 /5 ou /30 et la densité de dislocations équivalente (figure 2-18.c).

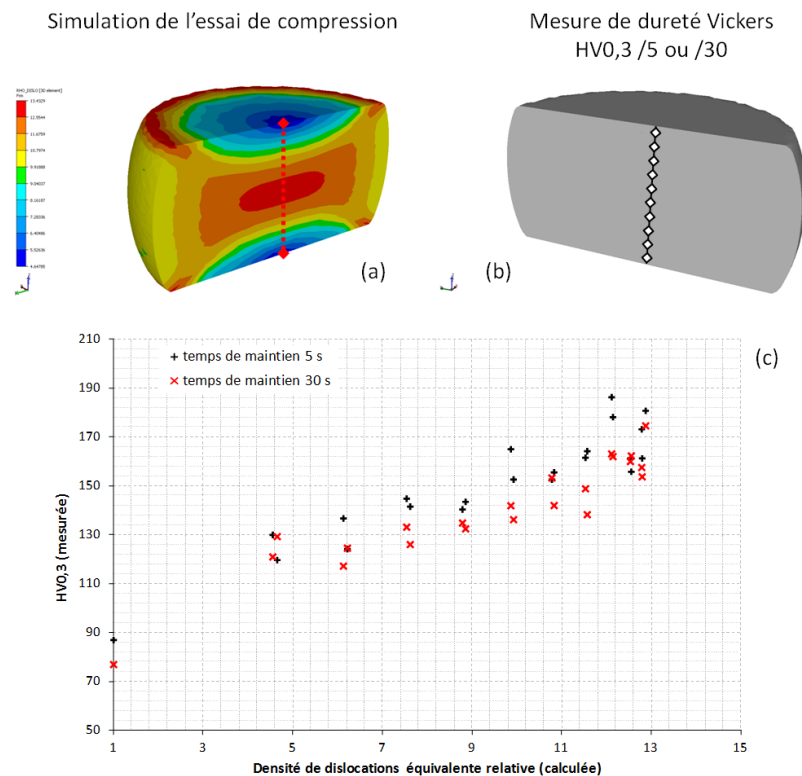


Figure 2-18. Méthode détermination de la relation HV0,3/densité de dislocations équivalente

Pour compléter ces données, on utilise également des couples HV0,3-densité de dislocations équivalente obtenus à partir d'un essai de compression sur éprouvette « double cône », détaillé dans l'annexe A9. La figure 2-19 présente l'ensemble des données recueillies pour les deux temps de maintien. On confirme ici l'importance de la prise en compte du temps de maintien dans l'établissement de cette relation entre dureté Vickers et densité de dislocations équivalente. L'effet de diminution de la dureté au cours du temps observé sur le tantale recristallisé est également présent pour du tantale déformé.

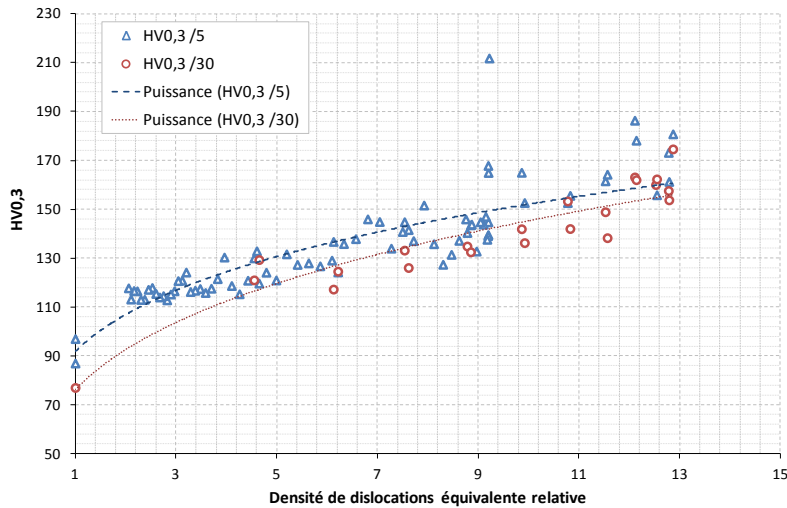


Figure 2-19. Relation entre HV0,3 /5 ou /30 et la densité de dislocations équivalente

La dureté est directement liée à la contrainte à travers la relation de Tabor (2.16) et cette dernière est liée à la densité de dislocations équivalente par la loi de comportement que l'on a choisie (2.10). La contrainte dépendant de la racine carrée de la densité de dislocations équivalente, nous allons mettre la relation entre dureté et densité de dislocations sous la forme :

$$HV0,3 = a\sqrt{\rho_{eq}} + b \quad \text{Equation 2.18}$$

A partir des données expérimentales (Figure 2-19), on identifie les paramètres  $a$  et  $b$  pour les deux temps de maintien, ce qui donne les relations suivantes :

$$HV0,3/5 = 27\sqrt{\rho_{eq}} + 69 \quad \text{Equation 2.19}$$

$$HV0,3/30 = 31\sqrt{\rho_{eq}} + 48 \quad \text{Equation 2.20}$$

Ces deux équations (2-19 et 2-20) relient la dureté Vickers 300 gf à la densité de dislocations initialement présente dans le volume testé. On retrouve l'effet du temps de maintien sur la dureté Vickers (figure 2-19), lequel s'atténue légèrement pour les valeurs de densité de dislocations équivalente les plus importantes, ce qui semble cohérent.

Malgré une stratégie initiale mise en défaut par la simulation numérique de l'indentation, une méthode semi-numérique / semi-expérimentale a été mise en place pour définir la corrélation existant entre dureté Vickers et densité de dislocations équivalente. Nous avons à présent deux relations permettant d'évaluer la densité de dislocations dans le tantale

à partir d'une mesure de dureté Vickers réalisée avec une charge de 300 gf pour un temps de maintien de soit 5 s soit 30 s. Il est à noter que les valeurs de temps de maintien sont hors des conditions définies par la norme ISO 6507-1. On prendra donc soin de spécifier le temps utilisé : HV0,3 /5 ou HV0,3/30.

### III. DESCRIPTION DES MICROSTRUCTURES DE DEFORMATION DANS LE TANTALE

La densité de dislocations équivalente traduit l'état du matériau déformé à partir de la contrainte macroscopique qui le caractérise. Nous allons compléter cette approche mécanique par des observations en microscopie de microstructures de tantale ayant subi différentes conditions de déformation à température ambiante. Leur caractérisation permettra de montrer les spécificités des microstructures du tantale déformé à froid.

#### 1. Anisotropie de comportement plastique

Lors de la déformation plastique d'un polycristal, l'écrouissage est différent d'un grain à l'autre en fonction de l'orientation cristallographique et du type de sollicitation imposée. Cette hétérogénéité est mise en évidence dans un pion de tantale déformé en compression (déformation équivalente locale de 0,7 à une vitesse de déformation de l'ordre de  $0,1 \text{ s}^{-1}$ ) par le calcul des facteurs de Taylor (figure 2-20). Ce facteur nous renseigne sur l'activité des systèmes de glissement pendant la déformation. Un facteur de Taylor élevé indique une forte activité des systèmes de glissement et donc un écrouissage plus important que pour un grain présentant un facteur de Taylor plus faible.

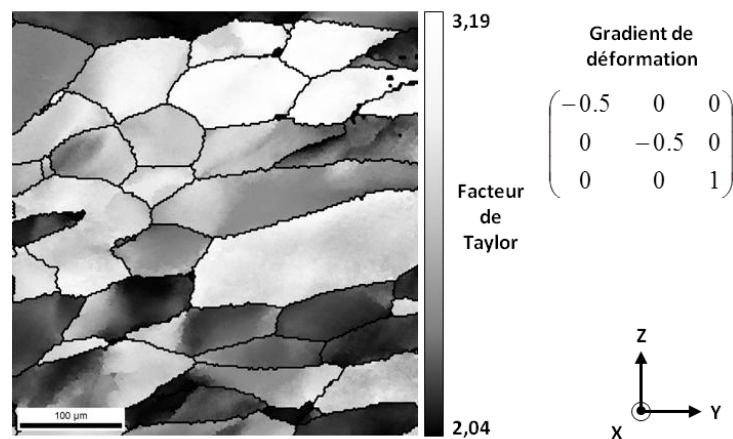


Figure 2-20. Cartographie des facteurs de Taylor d'un échantillon de Tantale déformé en compression

La dépendance du comportement mécanique à l'orientation cristallographique d'un grain de tantale a été investiguée plus en détails dans (Vandermeer & Snyder 1979). Cette étude a été réalisée sur trois monocristaux d'orientations  $(001)[\bar{1}\bar{1}0]$ ,  $(112)[\bar{1}\bar{1}0]$  et  $(111)[\bar{1}\bar{1}0]$  déformés à 80% par laminage à froid. Des mesures de dureté Vickers HV0,5 ont été réalisées au cours de la déformation pour estimer l'écrouissage de chaque monocristal et montrent que ceux-ci ont une réponse mécanique différente pour une même déformation

(figure 2-21). Malgré une anisotropie peu marquée de la contrainte d'écoulement pour une déformation nulle, le monocristal  $(111)[\bar{1}\bar{1}0]$  atteint un niveau de contrainte plus important que les deux autres à la fin du laminage.

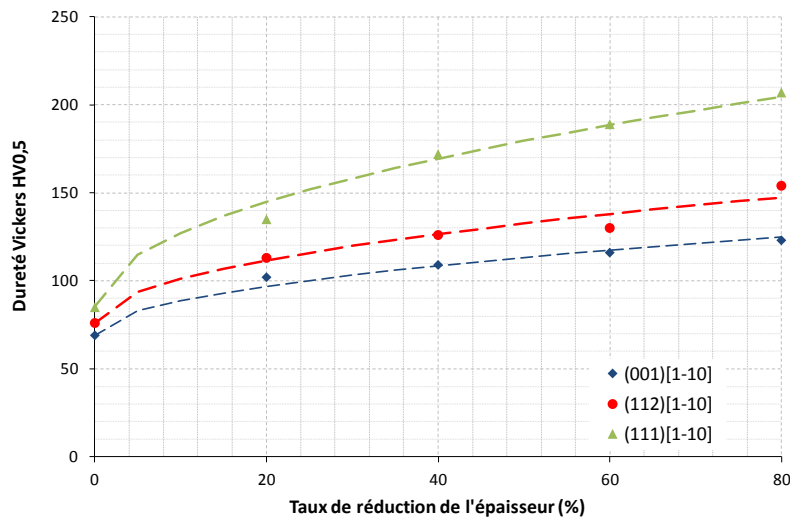


Figure 2-21. Evolution de la dureté Vickers au cours de la déformation pour trois monocristaux de tantale déformés par laminage à froid (données extraites de (Vandermeer & Snyder 1979))

La différence d'écrouissage observée sur ces monocristaux va engendrer une dispersion de l'orientation cristallographique initiale (figure 2-22). Le monocristal d'orientation cristallographique  $(111)[\bar{1}\bar{1}0]$  est celui qui s'écrouit le plus et est également celui qui montre la plus grande dispersion de son orientation après déformation. Au contraire, le monocristal  $(001)[\bar{1}\bar{1}0]$  s'écrouissant moins, il a une orientation cristallographique peu dispersée après laminage. Ainsi, plus l'écrouissage est important et plus l'orientation se disperse.

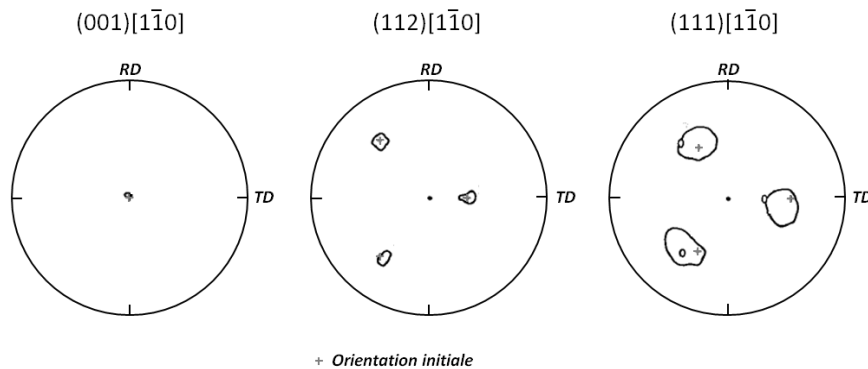


Figure 2-22. Figures de pôle  $\{200\}$  de trois monocristaux de tantale pur après déformation par laminage à froid (Vandermeer & Snyder 1979)

Cette dispersion est liée à la présence de dislocations qui provoquent des rotations locales du réseau cristallin et modifient donc l'orientation locale du grain. L'augmentation de la densité de dislocations va augmenter la dispersion de l'orientation cristallographique. Un bon marqueur de l'anisotropie de comportement plastique sera donc les désorientations intragranulaires qui seront estimée grâce au « Kernel Average Misorientation » (KAM) disponible dans le logiciel TSL OIM analysis et décrit dans l'annexe A6.

## 2. Hétérogénéités des microstructures intragranulaires

Nous avons évoqué précédemment que le comportement en plasticité du tantale était dépendant du type de sollicitation aussi bien que de l'orientation cristallographique. Un monocristal étant par définition sans grains voisins, la sollicitation mécanique pourra, dans de bonnes conditions de frottement, être considérée uniforme. Dans un polycristal, le voisinage de chacun des grains aura un impact direct sur tout ou une partie du grain en modifiant le tenseur local des vitesses de déformation. Ceci va engendrer des différences d'écouissage au sein d'un même grain et donc des hétérogénéités des microstructures intragranulaires. La figure 2-23 présente les désorientations intragranulaires dans une microstructure d'un échantillon de tantale déformé par torsion jusqu'à une déformation équivalente de 0,64 à une vitesse de déformation de  $0,05 \text{ s}^{-1}$ . On constate que ces désorientations sont hétérogènes à l'intérieur même d'un grain et que les désorientations les plus fortes se retrouvent au niveau des joints de grains et des points triples.

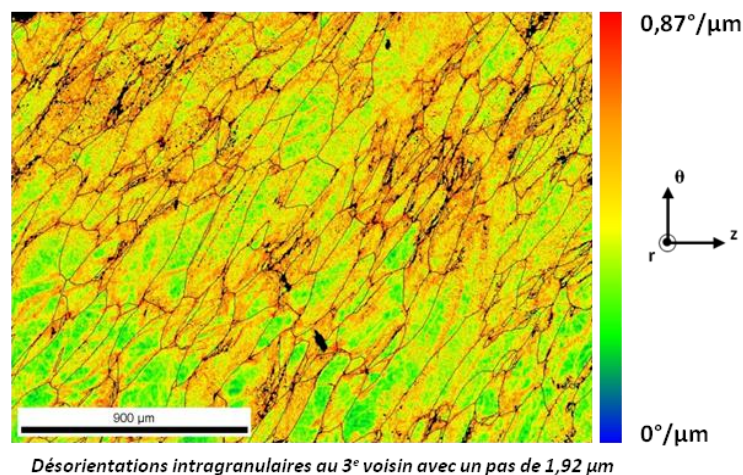
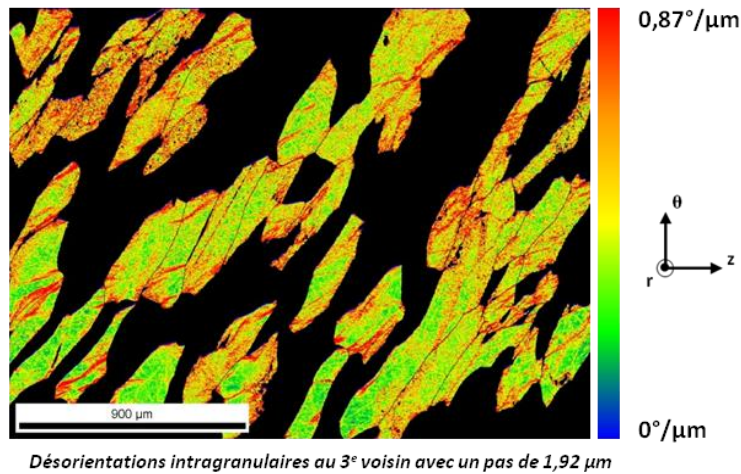


Figure 2-23. Désorientations intragranulaires dans un polycristal de tantale déformé par torsion

L'hétérogénéité de déformation intragranulaire va dépendre du niveau de déformation macroscopique équivalente et de la taille des grains. Sur la microstructure de la figure 2-23, on voit que les plus petits grains présentent déjà une microstructure intragranulaire plus homogène alors que les plus gros grains montrent de réelles différences d'écouissage en fonction de la zone du grain considérée (figure 2-24). On imagine qu'à des niveaux plus faibles de déformation équivalente macroscopique, ces hétérogénéités seraient également visibles dans les plus petits grains. L'homogénéisation de l'écouissage à l'intérieur d'un grain dépend également du changement de forme au cours de la déformation et notamment en torsion où les joints de grains ont tendance à se rapprocher.





**Figure 2-24.** Désorientations intragranulaires des grains de la microstructure de torsion (figure 2-23) ayant un diamètre équivalent supérieur à 200 μm

L'augmentation des désorientations intragranulaires à proximité des joints de grains et des points triples dans un polycristal réside dans le fait qu'ils sont des lieux de fortes incompatibilités de déformation. Pour expliquer cette incompatibilité, certains auteurs de la littérature (Bolmaro et al. 1997; Mach et al. 2010) ont introduit la notion de co-rotation. Au cours de la déformation plastique, le mouvement des dislocations sur les plans de glissement induit une rotation de la maille cristalline. Due à l'anisotropie, cette rotation sera généralement différente entre un grain et son voisinage direct. Les grains d'un polycristal étant contraints, l'incompatibilité de déformation aux interfaces des grains sera d'autant plus grande que la rotation des grains voisins sera différente (angle de co-rotation élevé). Pour vérifier cette notion de co-rotation et son applicabilité pour le tantale, nous avons réalisé un essai de compression uniaxiale sur un oligocristal<sup>2</sup> de tantale.

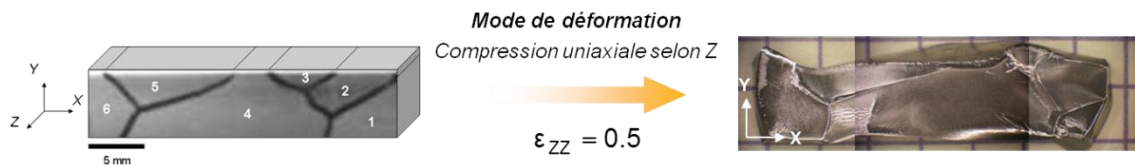
L'oligocristal de tantale est un parallélépipède composé de 6 grains colonnaires (figure 2-25) extrait d'une plaque découpée dans un lingot. Cette plaque nous a généreusement été fournie par H.R.Z. Sandim de l'université de Sao Paulo au Brésil. Le repère macroscopique utilisé pour définir les orientations cristallographiques est également défini sur la figure 2-25. Pour éviter au maximum d'écrouir l'échantillon, il a été découpé à la scie à fil puis poli sur les 6 faces avant déformation. Le polissage a permis de réduire l'écrouissage superficiel et de diminuer le frottement avec les outils de compression. Une feuille de Téflon a été placée entre l'oligocristal et les outils de compression afin de réduire encore plus le frottement. Cet échantillon a été déformé en compression dans la direction Z jusqu'à une déformation vraie de 0,5 à une vitesse de déformation moyenne de 0,01 s<sup>-1</sup>. Les orientations ont été mesurées avant et après déformation par EBSD, après polissage selon le protocole détaillé dans l'annexe A3. Le tableau 2-9 recense les orientations moyennes mesurées avant et après déformation des 6 grains de l'oligocristal. Chaque mesure est réalisée loin des joints de grains pour considérer la microstructure indépendante du voisinage.

<sup>2</sup> Echantillon possédant un faible nombre de grains de taille millimétrique

**Tableau 2-7. Orientations cristallographiques moyennes des grains de l'oligocristal avant et après déformation**

Grain	1	2	3	4	5	6
Orientation initiale	77	8	276	228	18	301
(°, Euler, Bunge)	43	4	36	52	40	35
	304	344	92	139	354	49
Orientation finale	65	66	279	240	42	335
(°, Euler, Bunge)	45	2	32	51	48	38
	311	285	137	137	339	45

La figure 2-25 montre l'évolution de la géométrie de l'oligocristal entre l'état initial et celle après déformation. Le nombre de grains étant très faible et leur taille étant importante, on observe clairement que la déformation est très différente d'un grain à l'autre. On retrouve l'anisotropie de comportement déjà évoquée dans la section III.1 de cette partie. La surface libre de l'échantillon a une forme très perturbée par rapport au parallélépipède initial, les grains pouvant se déformer librement car non contraints par un voisinage.

**Figure 2-25. Oligocristal de tantale pur avant et après compression et repère de référence**

L'avantage de cette expérience réside dans la taille et dans le caractère colonnaire des grains de l'oligocristal. En effet, les cartographies réalisées à proximité des joints de grains seront considérées comme résultant uniquement du comportement des deux grains de part et d'autre du joint. Cette configuration apparaît idéale pour étudier l'effet de la co-rotation sur l'augmentation des désorientations intragranulaires aux joints de grains.

Prenons pour exemple le grain 4 qui possède une interface avec chacun des 5 autres grains de l'échantillon. La figure 2-26 illustre l'augmentation de la désorientation intragranulaire au niveau des joints de grains. Chaque cartographie représente les gradients locaux d'orientation dans le grain 4 au voisinage de chaque autre grain. La cartographie des désorientations intragranulaires au centre du grain 4 est donnée comme référence.

De chaque cartographie représentative d'une zone proche d'un joint de grains (figure 2-26), on extrait la valeur moyenne des gradients locaux d'orientation. Cette valeur est ensuite normalisée par le gradient d'orientation local moyen au centre du grain 4. La figure 2-27 représente ainsi l'augmentation relative des désorientations intragranulaires par rapport au centre du grain pour chacun des joints de grains (identifiés par le couple de grains de part et d'autre de la frontière). L'augmentation de la désorientation moyenne est différente à proximité de chacun des joints du grain 4 avec ses voisins.



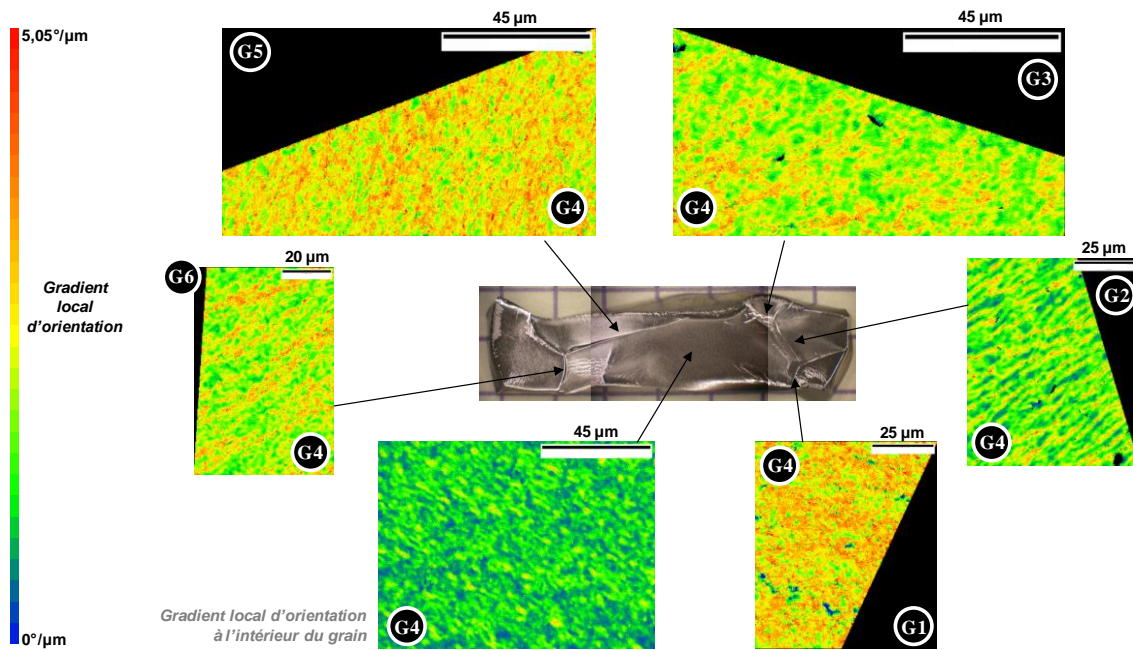


Figure 2-26. Cartographies des gradients locaux d'orientation au niveau des joints de grains dans le grain 4

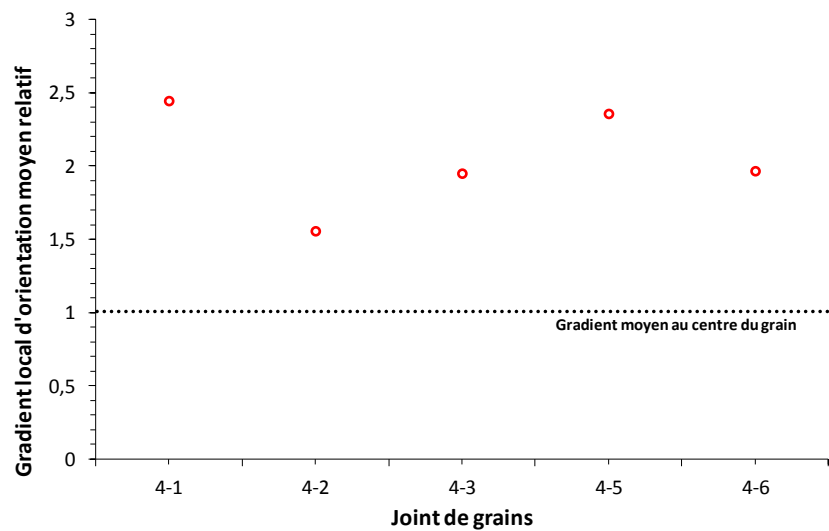


Figure 2-27. Influence des grains voisins sur les désorientations intragranulaires au voisinage des joints du grain 4

Le niveau de co-rotation est un angle représentatif de la rotation d'un grain par rapport à un autre, plus il est faible et plus les grains ont tendance à tourner de la même manière. La méthode de calcul du niveau de co-rotation est détaillée sur la figure 2-28.

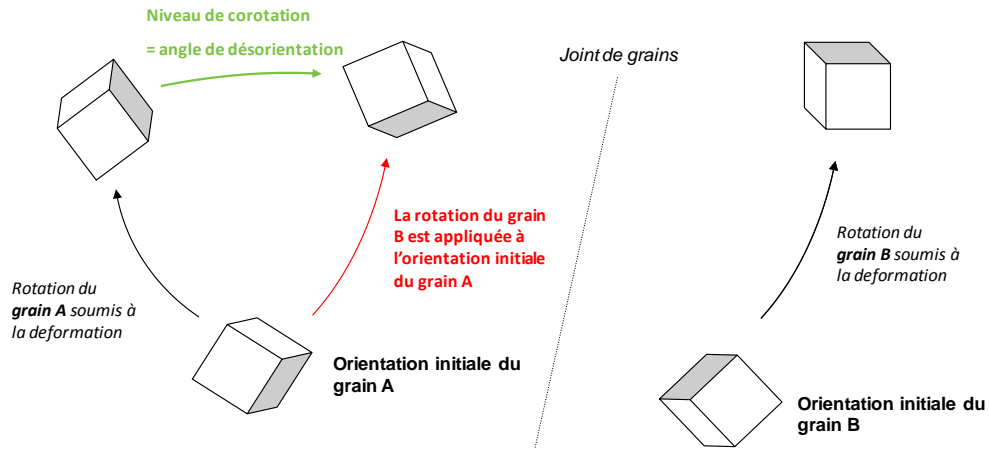


Figure 2-28. Méthode de calcul du niveau de co-rotation

En calculant le niveau de co-rotation pour chacun des couples de grains contenant le grain 4, on le compare ainsi à l'augmentation relative des désorientations intragranulaires au niveau de chaque joint de grains dans le grain 4 (figure 2-29). Clairement, plus les deux grains de part et d'autre du joint de grains tournent de manière différente, plus l'incompatibilité de déformation est forte et plus les désorientations intragranulaires augmentent relativement au centre du grain.

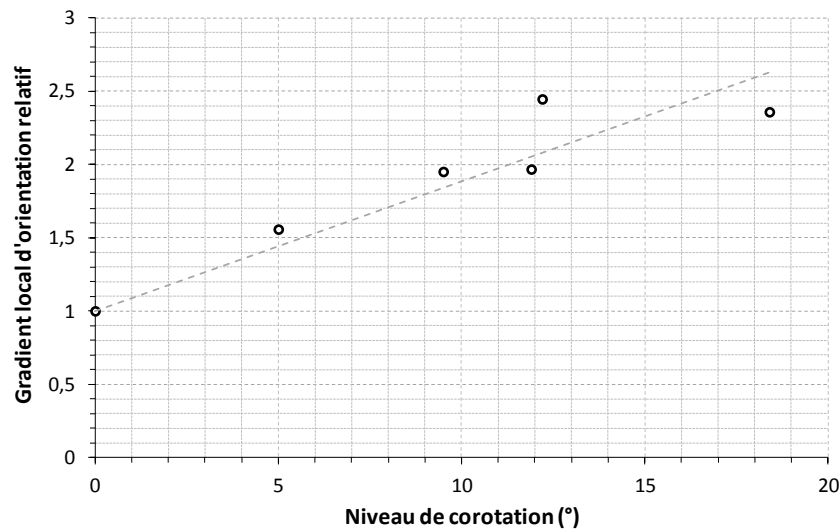


Figure 2-29. Influence de la co-rotation sur l'augmentation relative des désorientations intragranulaires au niveau des joints de grains (grain 4)

### 3. Evolution de la microstructure aux grandes déformations

Lorsque le niveau de déformation augmente à vitesse de déformation et température constante, on observe une saturation de la contrainte dans le tantale. Avec le modèle de comportement choisi dans ces travaux, cela se traduit par une saturation de la densité de dislocations équivalente qui laisserait à penser que la microstructure n'évolue plus.

Dans le cas de la microstructure évoquée section III.2 ( $\varepsilon_{eq} = 0,64$ ,  $\dot{\varepsilon}_{eq} = 0,5 \text{ s}^{-1}$ ), la densité de dislocations équivalente relative est d'environ 6,2. Lorsqu'on augmente la déformation par un facteur 2 ( $\varepsilon_{eq} = 1,28$ ), la densité de dislocation relative augmente peu (6,7) mais on peut tout de même voir des modifications au niveau de la microstructure (figure 2-30). Sur

la figure 2-30.a, on voit toujours l'hétérogénéité des désorientations intragranulaires que l'on pouvait observer pour un niveau de déformation moins important. Cependant, lorsque l'on compare la distribution de ces désorientations avec la distribution de l'échantillon deux fois moins déformé (figure 2-30.b), on constate un léger déplacement du pic, un élargissement de la distribution et une désorientation maximum augmentée. Cette observation peut être le signe de la création de parois de dislocations générant des désorientations intragranulaires significatives et traduisant la formation d'une sous-structure en cellules délimitées par des parois de dislocations.

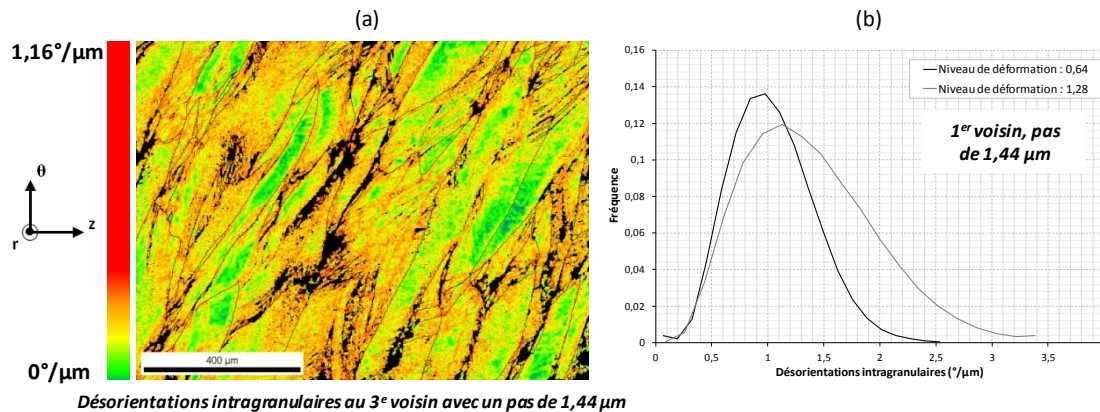


Figure 2-30. (a) Cartographie des désorientations intragranulaires dans un échantillon de torsion (déformation de 1,28)

(b) Distributions des désorientations intragranulaires pour deux niveaux de déformation ayant une densité de dislocation équivalente similaire

Cette réorganisation des dislocations en une sous-structure en cellules est phénomène classique dans le tantale et assez largement observé dans les procédés induisant de fortes déformations (Vandermeer & Snyder 1979; Sandim et al. 1999; Sandim et al. 2000; Sandim et al. 2001; Wei et al. 2003; Mathaudhu & Hartwig 2006). Dans notre cas de torsion, la déformation augmentant encore ( $\varepsilon_{eq} = 3,5$ ), on voit une fragmentation claire des grains (figure 2-31.a). Il est même difficile de reconnaître les grains initialement présents dans la microstructure non déformée. Dans ce cas, le processus de restauration dynamique a atteint des proportions telles que les sous-grains se sont transformés en grains. On retrouve d'ailleurs dans cette microstructure des preuves de restauration dynamique avec la présence de sous-joints de grains dans les grains ayant un diamètre équivalent supérieur à 1 μm (figure 2-31.b).

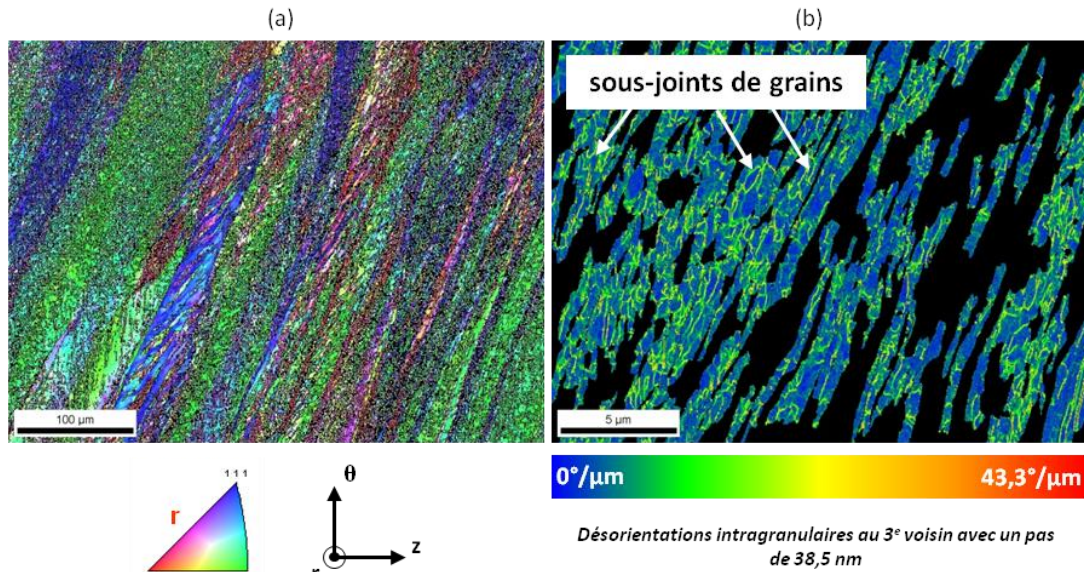


Figure 2-31. (a) Microstructure d'un échantillon de tantale déformé par torsion (3,5 de déformation)

(b) désorientations intragranulaires dans les grains supérieurs à 1 µm

Due à l'anisotropie de comportement et à l'hétérogénéité de l'écroutissage à l'intérieur même d'un grain, cette sous-structure générée par la restauration dynamique ne va pas se former de manière homogène dans la microstructure. La localisation de l'écroutissage aux joints de grains et aux points triples va favoriser la formation des sous-grains dans ces régions de la microstructure. En considérant la définition d'un germe de recristallisation, il est fort probable que les cellules formées au cours de la déformation soient des embryons de germes. La figure 2-32 montre, grâce à une image d'électrons rétrodiffusés d'un échantillon de tantale déformé en torsion, des cellules proches d'un joint de grains se retrouvant dans une configuration similaire à celle décrite dans certaines théories de la germination basée sur la croissance anormale de sous-grains (Holm et al. 2003; Brechet & Martin 2006). On comprend alors pourquoi le déclenchement de la recristallisation peut être facilité aux joints de grains et pourquoi plus la déformation augmente et plus la recristallisation sera rapide.

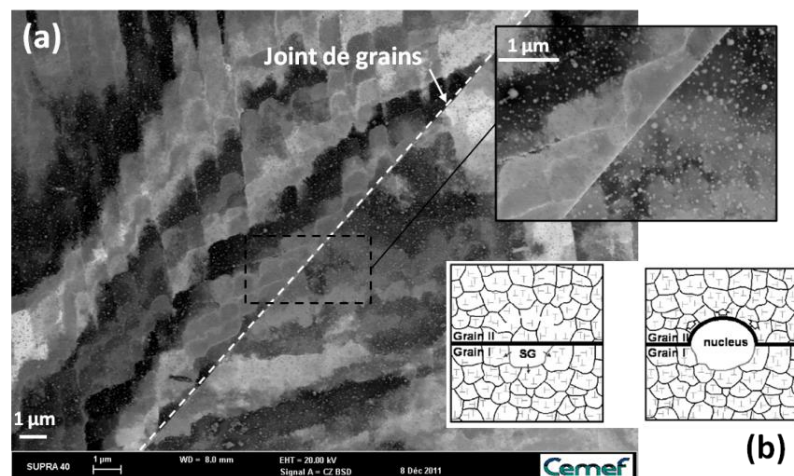


Figure 2-32. (a) Sous-structure de déformation dans un échantillon de tantale déformé par torsion (Imagerie d'électrons rétrodiffusés)

(b) Vue schématique du mécanisme de germination par croissance de sous-grains (Brechet & Martin 2006)

## SYNTHESE

Dans cette deuxième partie, l'objectif principal était d'avoir un outil fiable permettant de décrire l'état déformé du tantale et notamment la densité de dislocations, pour alimenter la modélisation de la recristallisation. A partir de théories et de lois déjà existantes pour le tantale provenant de travaux précédents au CEA DAM Valduc, nous proposons de nouveaux paramètres afin d'améliorer la modélisation du comportement mécanique de ce matériau (tableau 2-8).

**Tableau 2-8. Tableau de synthèse de la loi de comportement choisie et identifiée pour le tantale**

$\sigma = \sigma_a \sqrt{\rho_{eq}} + \sigma_0^* \left[ 1 - \left( \frac{kT}{\Delta G_0} \ln \left( \frac{\dot{\varepsilon}_0}{\dot{\varepsilon}} \right) \right)^{\frac{1}{q}} \right]^{\frac{1}{p}}$		
Contrainte d'écoulement	$\sigma_a$ (MPa)	100
	$\sigma_0^*$ (MPa)	1047
	$p$	0,47
	$q$	1,44
	$\Delta G_0$ (J/at)	$1,28 \times 10^{-19}$
	$\dot{\varepsilon}_0$ (s <sup>-1</sup> )	$2,5 \times 10^5$
$\frac{d\rho_{eq}}{d\varepsilon} = M_{II}(\dot{\varepsilon}, T) - k_a(\dot{\varepsilon}, T)\rho_{eq}$		
Ecrouissage	$\begin{cases} k_a(\dot{\varepsilon}, T) = k_{a,ath} + k_a^* \left( 1 - \frac{kT}{\Delta G_k} \ln \left( \frac{\dot{\varepsilon}_k}{\dot{\varepsilon}} \right) \right) & \text{si } \frac{kT}{\Delta G_k} \ln \left( \frac{\dot{\varepsilon}_k}{\dot{\varepsilon}} \right) \leq 1 \\ k_a(\dot{\varepsilon}, T) = k_{a,ath} & \text{sinon} \end{cases}$	
	$M_{II}$	24,5
	$k_{a,ath}$	1,6
	$k_a^*$	11
	$\Delta G_k$ (J/at)	$1 \times 10^{-19}$
	$\dot{\varepsilon}_k$ (s <sup>-1</sup> )	$2 \times 10^8$

Ce modèle permet de retranscrire l'évolution de la contrainte d'écoulement à la transition élastoplastique avec la température et la vitesse de déformation. Il permet également de bien reproduire l'écrouissage à température ambiante et donc de représenter la saturation des propriétés mécaniques. La modélisation du comportement mécanique permet d'avoir une description de la densité de dislocations équivalente en tout point d'une pièce par simulation numérique de la déformation plastique. Dans cette étude du comportement mécanique, nous avons pu estimer une densité de dislocations du matériau recristallisé à partir de considérations mécaniques. Cette valeur est très peu évoquée dans la littérature mais elle est essentielle dans la modélisation de la recristallisation par le modèle en champ moyen. On l'estime à :

$$\rho_0 \approx 3,5 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$$



Lorsque le calcul de la densité de dislocations équivalente n'est pas possible par simulation numérique, une mesure de microdureté Vickers représente une alternative expérimentale. Nous avons pu mettre en évidence que la dureté Vickers du tantale est fortement dépendante du temps de maintien : plus le temps de maintien augmente, et plus la dureté diminue, jusqu'à atteindre un palier de dureté. Nous avons établi une loi semi-expérimentale/semi-numérique qui fait la corrélation entre des mesures de dureté Vickers à 300 gf réalisées sur un pion de compression et les densités de dislocations prédites par la simulation numérique de ce même essai de compression. Cette loi permettra à partir d'un essai de dureté Vickers avec une charge de 300 gf et un temps de maintien de 5 s de déterminer la densité de dislocations équivalente (équation 2.19). Une autre loi a été établie pour un temps de maintien de 30 s (équation 2.20).

$$HV_{0,3/5} = 27\sqrt{\rho_{eq}} + 69$$

Equation 2.19

$$HV_{0,3/30} = 31\sqrt{\rho_{eq}} + 48$$

Equation 2.20

La description de la microstructure de l'état déformé est basée sur une seule densité de dislocations. Cette approche mécanique a été complétée par des observations en microscopie électronique à balayage de microstructures de tantale déformé. Ces observations nous ont permis de mettre en évidence l'anisotropie de comportement à l'échelle du grain. Cette anisotropie couplée aux hétérogénéités de la sollicitation mécanique à l'échelle locale, conduisent à des variations de l'écrouissage à l'intérieur même d'un grain. Certaines zones d'un grain, et plus particulièrement les zones où l'incompatibilité de déformation est la plus forte comme les joints de grains et les points triples, vont montrer de fortes désorientations intragranulaires après déformation. Conformément à la théorie de la co-rotation évoquée dans la littérature, nous avons mis en évidence que l'augmentation des désorientations intragranulaires au niveau des joints de grains est liée au fait que les grains de part et d'autre du joint subissent une rotation différente sous l'effet de la déformation. Enfin, aux plus fortes déformations, nous avons pu voir le développement de la restauration dynamique formant une sous-structure composée de cellules délimitées par des parois de dislocations. Ce phénomène peut même conduire à la formation de nouveaux grains (recristallisation dynamique continue). Ces cellules semblent être des précurseurs de la germination de la recristallisation. A partir de cette observation de la microstructure, on peut penser que la distribution de densité de dislocations équivalente utilisée dans le modèle pourra décrire l'hétérogénéité de comportement (écrouissage) entre les grains après déformation. Cependant, il sera plus difficile de prendre en compte les hétérogénéités intragranulaires ainsi que la formation de la sous-structure en cellule.

Dans la partie suivante, nous allons nous pencher sur les évolutions microstructurales dans le tantale pur au cours d'un traitement thermique qui suit une étape de déformation. Nous pourrions ainsi déterminer en quoi cette microstructure de déformation est importante et comment elle conditionne les modifications de la microstructure.



## **TROISIEME PARTIE.**

### **Caractérisation de la recristallisation statique et de la croissance de grains dans le tantale pur**



## INTRODUCTION

---

La première partie de ce manuscrit a été consacrée à la description du modèle qui sera utilisé pour simuler la recristallisation statique discontinue et la croissance de grains dans le tantale. L'utilisation de ce modèle requiert de définir au préalable un certain nombre de paramètres et/ou de phénomènes liés au matériau considéré. Dans cette optique, la seconde partie est focalisée sur la description de la microstructure de l'état déformé. Les variables microstructurales considérées sont la taille de grains et la densité de dislocations équivalente<sup>3</sup> qui traduit l'énergie stockée dans le matériau au cours de la déformation.

Cette troisième partie s'attache à décrire les phénomènes de recristallisation statique et de croissance de grains dans le tantale afin de déterminer une partie des paramètres ou hypothèses du modèle pour le cas du tantale. Ce travail permettra également de fournir des données expérimentales qui pourront être confrontées aux résultats de la simulation.

Cette partie débute par une revue du phénomène de recristallisation du tantale dans la littérature avant de détailler la caractérisation expérimentale que nous avons pu réaliser afin de mieux maîtriser le phénomène de recristallisation statique.

### I. LA RESTAURATION, LA RECRISTALLISATION STATIQUE ET LA CROISSANCE DE GRAINS DU TANTALE DANS LA LITTÉRATURE

---

En comparaison d'autres matériaux plus répandus dans le milieu industriel, la recristallisation et la croissance de grains dans le tantale ont été peu étudiées. Néanmoins, il apparaît tout de même que les différents travaux menés sur le tantale couvrent la majorité des aspects liés aux évolutions microstructurales au cours d'un traitement thermique.

#### 1. Restauration statique

La restauration statique correspond à un réarrangement et une annihilation partielle des défauts, principalement des dislocations, stockés dans le matériau pendant la déformation. C'est un phénomène thermiquement activé qui se produit avant que la recristallisation ne se déclenche. La restauration statique va se traduire par une diminution de l'énergie stockée. Dans le cas du tantale, ce phénomène a pu être caractérisé par des mesures de microdureté (Hupalo & Sandim 2001) qui ont par ailleurs été étudiées dans la deuxième partie, en tant que moyen d'évaluer l'énergie stockée dans un matériau. Des échantillons de tantale ont été déformés à trois niveaux de déformation, puis recuits à 4 températures entre 700 et 1000°C pour des temps de palier allant de 15 min à 2 h. A chaque temps de palier, des mesures de microdureté Vickers HV0,1<sup>4</sup> ont été réalisées dans les zones ne présentant pas de recristallisation. On peut ainsi avoir une idée des cinétiques de restauration dans le tantale et en tirer un certain nombre de conclusions.

---

<sup>3</sup> Variable représentative de la microstructure dans la modélisation du comportement mécanique. Elle prend en compte la densité de dislocations totale, la taille de grains, les impuretés.

<sup>4</sup> Essai d'indentation Vickers réalisé avec une charge de 0,1 kgf selon les conditions de la norme ISO 6507-1

La restauration statique dépend de la température et du temps de recuit. Les données expérimentales sur la figure 3-1 montrent que la restauration entraîne une chute significative de la dureté dans les premières minutes du traitement thermique. Plus la température est élevée (pour un même état de déformation) et plus le phénomène de restauration diminue l'énergie stockée dans le matériau. Par la suite, pour des temps supérieurs à 15 min et quelle que soit la température, le phénomène est beaucoup plus lent. La dureté Vickers semble même tendre vers une valeur asymptotique.

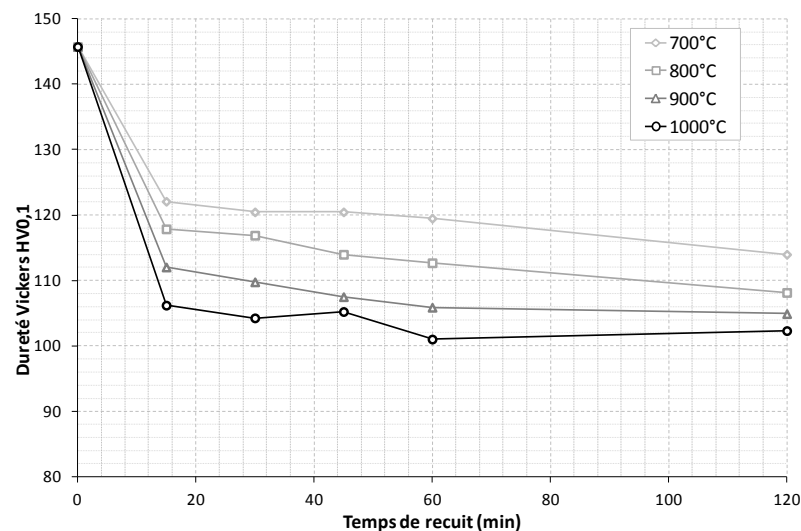


Figure 3-1. Evolution de la dureté Vickers HV0,1 du tantale en fonction du temps de recuit dans des zones en restauration pour une déformation équivalente de 1,3 (données extraites de (Hupalo & Sandim 2001))

La valeur asymptotique vers laquelle tend la dureté dépend de la température de recuit mais également de l'état microstructural issu de la déformation plastique. Le niveau de déformation seul ne permet pas de rendre compte de la microstructure. Il faut également prendre en compte la vitesse de déformation. Ne connaissant pas la vitesse de déformation, on la suppose identique pour tous les essais. La figure 3-2 présente l'évolution de la valeur de la dureté Vickers HV0,1 au bout de 2 h de recuit en fonction de la température pour trois niveaux de déformation. Cette valeur sera considérée comme proche de la valeur asymptotique de la dureté. Il est assez immédiat de constater que la valeur de dureté HV0,1 au bout de 2 h de recuit diminue fortement lorsque la température augmente. Pour les deux niveaux de déformation les plus faibles, la dureté évolue de la même manière et la différence de niveau de déformation n'est pas réellement significative. Pour le niveau de déformation le plus élevé, la pente d'évolution de la dureté en fonction de la température est plus élevée et permet finalement à la dureté « asymptotique » à 1000°C de devenir comparable à celles des deux autres niveaux.

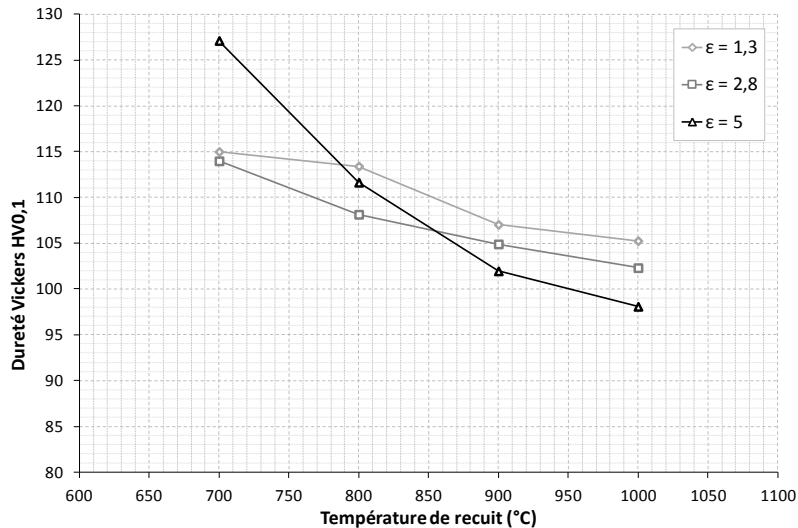


Figure 3-2. Valeur de la dureté Vickers HV0,1 au bout de 2 h de recuit en fonction de la température et de la déformation initiale (données extraites de (Hupalo & Sandim 2001))

Malheureusement, la valeur de la dureté Vickers HV0,1 du matériau avant déformation donnée dans ces travaux (Hupalo & Sandim 2001; Sandim et al. 2000) semble erronée. Dans le texte, il est évoqué une dureté de 66 HV5 alors que sur les figures apparaît une dureté de 66 HV0,1. La valeur la plus probable serait 66 HV5. On peut ainsi uniquement estimer une valeur de 85-86 HV0,1 pour le matériau initial à partir des mesures de dureté HV0,1 réalisées sur le matériau déformé puis recristallisé à 1100°C. En comparant les données des figures 3-1 et 3-2 à cette valeur hypothétique de dureté du matériau recristallisé, la restauration statique dans le tantale ne permet pas d'effacer complètement l'énergie stockée au cours de la déformation. Cette notion de valeur asymptotique de l'énergie stockée au cours de la restauration statique du tantale a également été évoquée dans d'autres travaux (Houillon 2009; Stüwe et al. 2002).

Les données expérimentales extraites des travaux de (Hupalo & Sandim 2001) permettent également de dire que les premiers signes d'évolution de la microstructure apparaissent dès 600°C. Cela signifie que le temps passé au dessus de cette température est à prendre en compte si l'on veut suivre l'évolution de l'énergie stockée. Il est cependant assez rare que dans les études de recristallisation et de restauration menées sur le tantale, la vitesse de montée en température soit spécifiée. Sans cette donnée, les résultats deviennent plus difficiles à comparer car la restauration au cours du chauffage a en principe un effet sur la recristallisation (voir section 1.2. de cette partie).

## 2. Recristallisation statique discontinue

Dans la littérature, la recristallisation statique du tantale a été étudiée d'un point de vue macroscopique afin de déterminer les conditions de traitements thermomécaniques permettant de recristalliser le matériau. Nous verrons également qu'un effort important a été porté sur la compréhension des mécanismes locaux de recristallisation. Les différentes études ont été réalisées sur des échantillons de tantale pur (avec différents taux d'impuretés) déformés à froid par des procédés permettant de grandes déformations :

- ECAE (Equal Channel Angle Extrusion) (Hartwig et al. 2002; Mathaudhu & Hartwig 2006)
- « Swaging » (Hupalo & Sandim 2001; Sandim et al. 1999) qui consiste à réduire le diamètre d'un barreau par compression radiale.
- Laminage (Vandermeer & Snyder 1979; Raabe et al. 1994; Sandim et al. 2001; Sandim et al. 2005; Martorano et al. 2007)

#### A. INFLUENCE DES PARAMETRES THERMOMECHANIQUES DU PROCEDE

Deux études portent particulièrement sur la caractérisation macroscopique de la recristallisation du tantale dans le cas de déformations obtenues par ECAE ((Hartwig et al. 2002), travaux complétés assez largement par la suite (Mathaudhu & Hartwig 2006)), et par « swaging » (Hupalo & Sandim 2001). Ces travaux utilisent la méthode de la microdureté Vickers pour caractériser la recristallisation en fonction de la température de recuit pour un temps de recuit donné. Ils se basent sur le fait que la fraction recristallisée augmentant, la dureté du matériau chute pour atteindre la dureté du matériau sans défauts lorsque qu'il sera 100% recristallisé. Cependant ces deux études ne sont pas strictement comparables, les temps de recuit ne sont pas les mêmes et la microdureté Vickers n'est pas réalisée avec la même charge.

Les résultats les plus probants sont extraits de (Mathaudhu & Hartwig 2006) et sont présentés sur la figure 3-3. La courbe représente l'évolution de la dureté en fonction de la température pour des recuits de 90 min. La dureté évolue peu avant 600°C ce qui est le signe que la microstructure évolue peu ou pas. Au dessus de 1100°C, le matériau présente la dureté du tantale recristallisé sous une charge de 0,3 kgf et ceci quel que soit le niveau de déformation équivalente. Entre 800°C et 1100°C, la dureté chute brutalement, traduisant une modification significative de la microstructure, par recristallisation. Il n'est pas simple, à partir de ces courbes, de déterminer la température à laquelle la recristallisation va se déclencher car entre 600 et 800°C la diminution de dureté peut être due soit à la restauration, soit au début de la recristallisation. En revanche, il semble que la température pour laquelle, en 90 min, le tantale recristallise à 100%, dépend de la quantité de déformation. Plus la déformation équivalente va être élevée et plus la température de recristallisation totale sera faible.

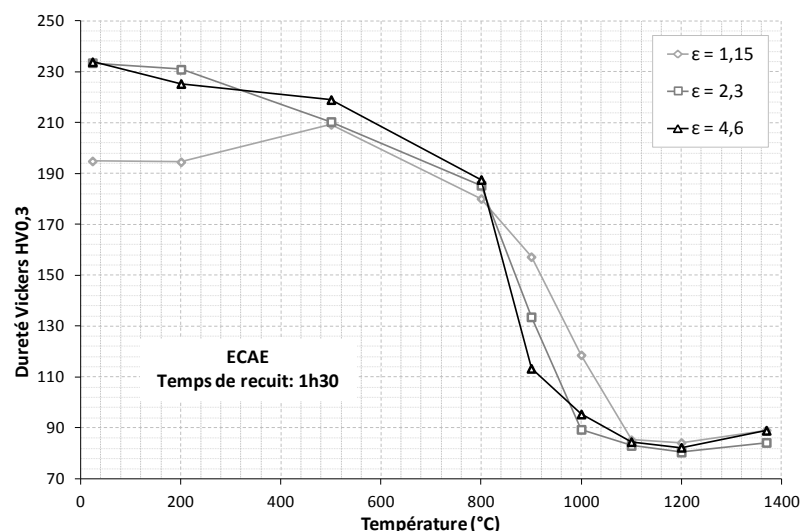


Figure 3-3. Dureté Vickers HV0,3 du tantale déformé par ECAE après recuit de 90 min à différentes températures et pour trois niveaux de déformation (Mathaudhu & Hartwig 2006)

Les travaux menés sur la recristallisation du tantale déformé par « swaging » (Hupalo & Sandim 2001) apportent quelques éléments supplémentaires en termes de cinétiques de recristallisation. Les informations qui sont données discriminent trois états de la microstructure en fonction du temps de recuit, de la température et de la déformation équivalente initiale : restauré, partiellement recristallisé et totalement recristallisé. Quelle que soit la déformation (dans la gamme considérée supérieure à 1,3), la recristallisation est complète pour une température de 1100°C à partir de 15 min de traitement. A partir de cette analyse qualitative de la recristallisation, on peut construire une « carte de recristallisation » pour chaque niveau de déformation (figure 3-4). On retrouve le fait que la recristallisation débute à température plus basse lorsque la déformation augmente. Il apparaît que la température de recristallisation totale ne diminue pas pour une déformation croissante.

Du point de vue des paramètres du procédé, la recristallisation du tantale pur va également dépendre de la vitesse à laquelle le palier thermique est atteint (Beckenhauer et al. 1993). Pour un état de déformation donné, la température à partir de laquelle se déclenche la recristallisation diminue lorsque la vitesse de chauffage augmente (figure 3-5.a). Le fait que la recristallisation se déclenche plus tôt est lié à la diminution de l'énergie stockée par restauration qui est moindre lorsque le chauffage est rapide. Précédemment, nous avons pu voir que la restauration était active dès 600°C, il est donc intéressant de considérer ce problème en termes de temps passé au dessus de 600°C (figure 3-5.b). On observe bien sûr que plus le temps passé au dessus de 600°C est long, plus la recristallisation se déclenche tard. La baisse de la température de recristallisation est plus importante pour les temps faibles (vitesse de chauffage rapide) que pour les temps plus élevés. Cette observation est par ailleurs cohérente avec les données de la figure 3-1, montrant que la restauration est très active sur les 15 premières minutes de traitement. Des études similaires ont été réalisées sur l'aluminium (Attallah et al. 2010) et sur le molybdène (Primig et al. 2012) montrant bien l'influence de la restauration sur la recristallisation. D'autres travaux ont cherché à modéliser cette influence de la restauration sur la recristallisation (Stüwe et al. 2002; Brechet et al. 2009; Price 1989). Certains de ces auteurs suggèrent que la restauration pourrait également avoir pour effet de faciliter la recristallisation en aidant à la formation des germes. La température de début de recristallisation serait alors plus basse, ce que l'on n'observe pas ici.

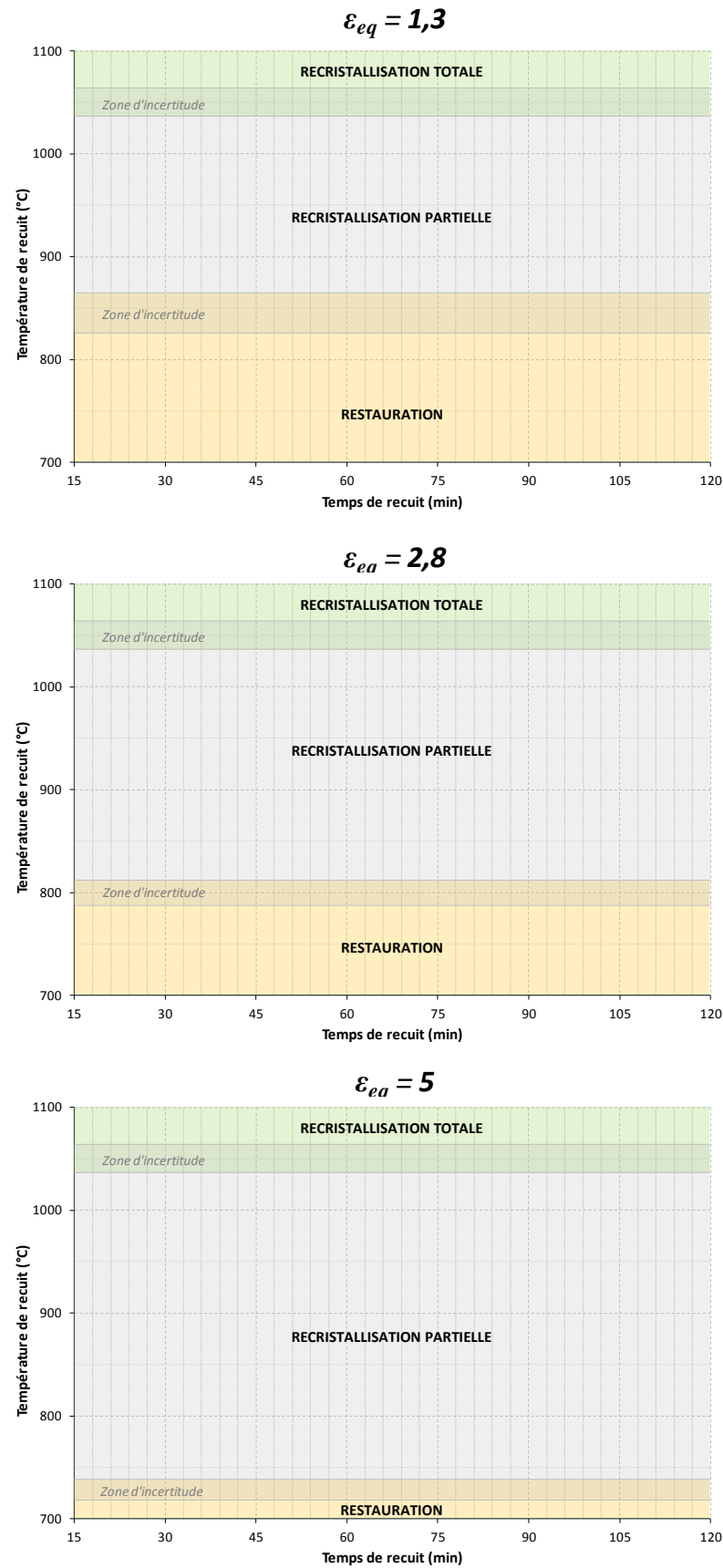


Figure 3-4. "Cartes de recristallisation" pour différents niveaux de déformation (construites à partir de (Hupalo & Sandim 2001))

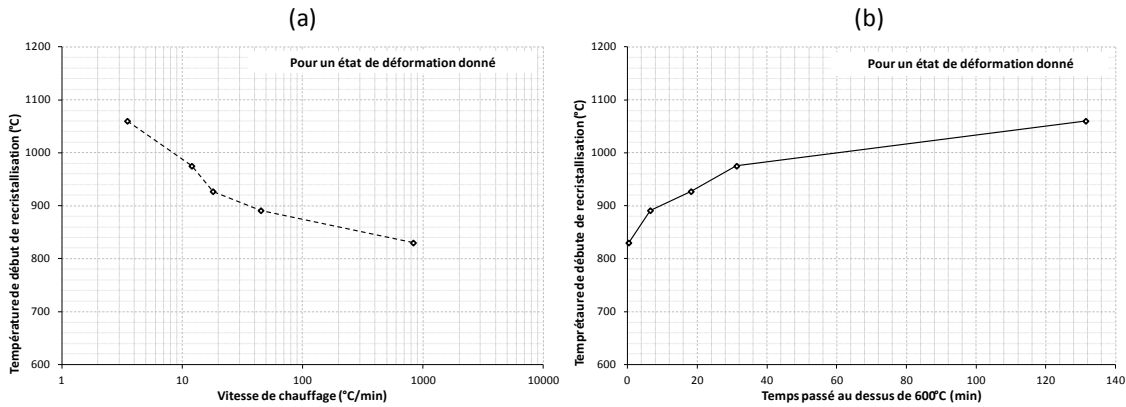


Figure 3-5. Effet de la vitesse de chauffage (a) et du temps passé au dessus de 600°C (b) sur la température de début de recristallisation (Beckenhauer et al. 1993)

### B. LA RECRISTALLISATION A L'ECHELLE GRANULAIRE

L'observation en détails de la microstructure d'un échantillon de tantale recristallisé (Hupalo & Sandim 2001) montre très clairement que l'approche macroscopique supposant la recristallisation homogène est rapidement mise en défaut. Différentes observations montrent l'inhomogénéité de la microstructure du tantale recristallisé ou partiellement recristallisé :

- Présence de grains restaurés subsistant dans une microstructure recristallisée quasi totalement (figure 3-6.a),
- Différence notable de taille de grains par « régions » correspondant aux anciens grains déformés (figure 3-6.b).

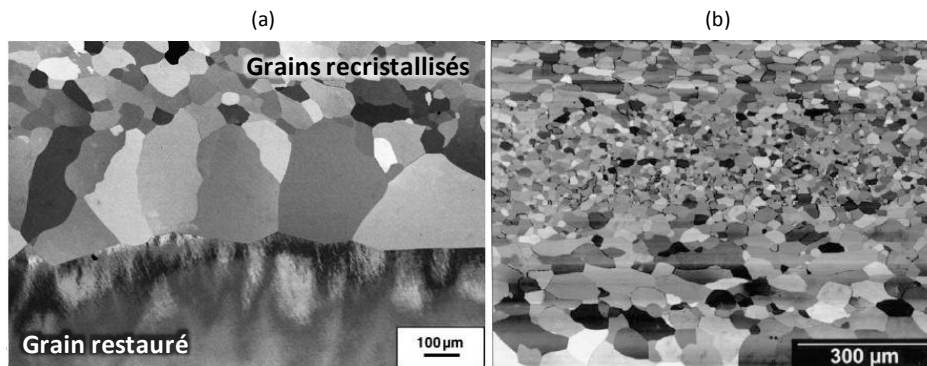


Figure 3-6. Inhomogénéités d'une microstructure recristallisée (micrographies MEB/BSE)

(a) présence d'un grain restauré (grain inférieur) dans une structure recristallisée. A noter la différence de taille de grains au niveau de l'interface avec le grain restauré (Sandim et al. 2005)

(b) hétérogénéité de taille de grains (Hupalo & Sandim 2001)

Cette hétérogénéité de la microstructure recristallisée est due à l'hétérogénéité de la microstructure après déformation. Dans la partie 2, nous avons pu montrer que certains grains formaient une sous-structure de dislocations alors que d'autres présentaient plutôt une densité de dislocations uniforme. La formation de cette sous-structure est liée à la stabilité de l'orientation cristallographique pendant la déformation considérée. Dans le tantale, la germination est favorisée par la présence de la sous-structure après déformation. Certains sous-grains, ou cellules, agiront en effet comme des germes potentiels pour la recristallisation (Sandim et al. 1999). Les grains présentant une sous-structure de déformation vont ainsi po-



tentiellement recrystalliser alors que les autres grains seront plus enclins à restaurer. C'est ce qui a pu être observé par Vandermeer (Vandermeer & Snyder 1979) sur des monocristaux de tantale.

Dans la microstructure recrystallisée, de plus gros grains recrystallisés peuvent être observés aux interfaces entre zones recrystallisées et grains restaurés (figure 3-6.a). Les germes activés dans cette zone ont en fait cru dans le grain voisin restauré pour consommer l'énergie restante dans celui-ci (Sandim et al. 2005). Cependant, les grains d'orientations cristallographiques les plus stables pendant la déformation peuvent ne pas présenter suffisamment d'énergie stockée pour permettre le mouvement des joints des grains recrystallisés à leur détriment. Ces grains se contentent donc de restaurer, et se retrouveront donc dans la microstructure finale de la pièce recuite même après un recuit à températures élevées (1400°C).

A l'intérieur d'un grain pouvant recrystalliser, il a été observé dans plusieurs travaux, principalement ceux de Sandim (Sandim et al. 2001; Hupalo & Sandim 2001; Sandim et al. 2005), que les premiers sites de germination se situent aux abords des joints de grains. Ceci n'a rien de surprenant étant donné que ces zones présentent de fortes perturbations des orientations cristallographiques avec des gradients forts impliquant une densité de dislocations localement plus élevée (Hirth 1972). Cependant, il a également été noté que des germes pouvaient apparaître au cœur des grains (Sandim et al. 2001). Ce phénomène a été rarement observé et pourrait résulter d'un effet de l'observation 2D d'une structure 3D. D'autres hétérogénéités de déformation telles que les bandes de déformation localisée et de cisaillement sont également des sites préférentiels pour la germination et pourraient également expliquer l'observation de germes au cœur des grains.

Une fois le germe potentiel activé, s'en suit la phase de croissance qui va donner le grain recrystallisé libre de dislocations. La force motrice de cette croissance est la consommation de l'énergie stockée dans la matrice déformée. Il a cependant été noté que la taille de grains après traitement thermique n'était pas homogène (figure 3-6.b) (Hupalo & Sandim 2001; Sandim et al. 2005), cependant cette hétérogénéité diminue lorsque la déformation précédent le traitement thermique augmente (figure 3-7). La taille de grains est reliée au nombre de germes localement activés. Lorsque le nombre de germes activés est localement important, les grains recrystallisés entrent donc rapidement en contact ce qui limite leur croissance. La différence locale d'activation des germes peut être expliquée par l'hétérogénéité de microstructure intragranulaire à la fois entre le centre des grains et les joints de grains et entre grains d'orientations cristallographiques différentes. L'hétérogénéité de microstructure intragranulaire à l'état déformé diminue lorsque la déformation macroscopique augmente, la taille de grains recrystallisés sera donc petite (grand nombre de germes activés) et relativement homogène.



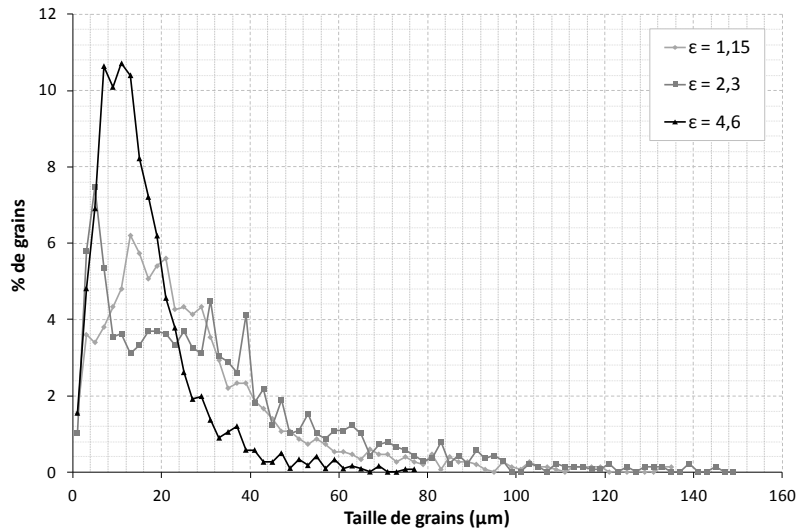


Figure 3-7. Distributions de taille de grains de microstructures recristallisées pour trois niveaux de déformation en ECAE (Mathaudhu & Hartwig 2006)

### C. TEXTURE DE RECRISTALLISATION

La texture de recristallisation des matériaux de structure cubique centrée a principalement été caractérisée après une déformation en laminage (Humphreys & Hatherly 2004). C'est également le cas du tantale (Raabe et al. 1994; Sandim et al. 2001; Sandim et al. 2005; Briant et al. 2000) même si une tentative a également été faite après une déformation en forgeage (Briant et al. 2000).

La texture de recristallisation peut se décrire assez simplement par deux fibres également utilisées pour décrire les textures de déformation dans les métaux de structure cubique centrée (Humphreys & Hatherly 2004) :

- Fibre  $\alpha$  : ensemble des orientations cristallographiques pour lesquelles la direction  $\langle 110 \rangle$  est parallèle à la direction de laminage. Le long de cette fibre les orientations les plus remarquables en terme d'intensité sont  $\{001\}\langle 110 \rangle$ ,  $\{112\}\langle 110 \rangle$ ,  $\{111\}\langle 110 \rangle$ .
- Fibre  $\gamma$  : ensemble des orientations cristallographiques pour lesquelles la direction  $\langle 111 \rangle$  est parallèle à la direction normale à la tôle laminée. Les composantes principales de cette fibre sont les orientations  $\{111\}\langle 110 \rangle$ ,  $\{111\}\langle 112 \rangle$ ,  $\{111\}\langle 123 \rangle$ .

Dans l'espace des angles d'Euler déterminés selon la convention proposée par Bunge (Bunge 1982), il est donc courant de représenter la fonction de distribution des orientations dans le plan  $(\varphi_1, \Phi, \varphi_2 = 45^\circ)$  dans lequel on retrouve les fibres  $\alpha$  et  $\gamma$  (figure 3-8).

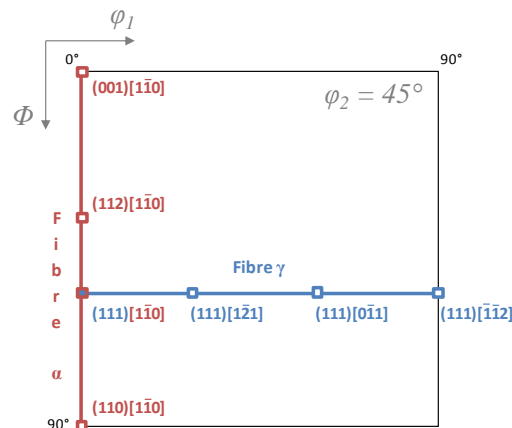


Figure 3-8. Représentation des fibres  $\alpha$  et  $\gamma$  dans la coupe à  $\varphi_2 = 45^\circ$  de l'espace des angles d'Euler (Humphreys & Hatherly 2004)

La texture de recristallisation du tantale pour une déformation en laminage à froid présente les caractéristiques d'une texture de recristallisation classique après une déformation en laminage pour les métaux de structure cubique centrée. Sur la figure 3-9, on constate que l'intensité des orientations de la fibre  $\alpha$  comprises entre  $\{001\}\langle 110 \rangle$  et  $\{112\}\langle 110 \rangle$  diminue alors que l'intensité des orientations de la fibre  $\gamma$  augmente. Cette texture de recristallisation a été expliquée dans le cas des aciers bas carbone par une germination préférentielle dans les grains d'orientation proche de celles de la fibre  $\gamma$ . En effet la germination de la recristallisation sera due à la croissance anormale des sous-grains formés au cours de la déformation dans la fibre  $\gamma$  (Dillamore et al. 1967).

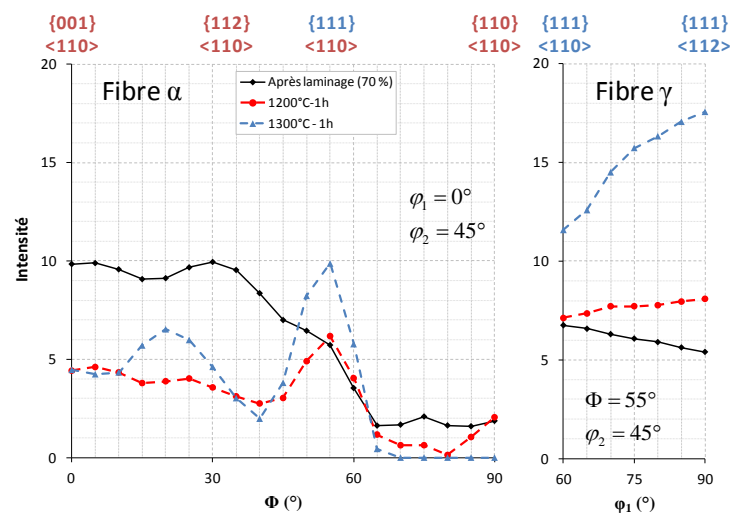


Figure 3-9. Texture de recristallisation dans du tantale déformé par laminage à froid puis recuit à deux températures pendant 1h (données extraites de (Raabe et al. 1994))

### 3. Croissance de grains

Très peu d'auteurs évoquent la croissance de grains après recristallisation complète du tantale (Hupalo & Sandim 2001; Mathaudhu & Hartwig 2006). Les données de la figure 3-10 traduisent l'évolution de la taille de grains à 1100°C d'une microstructure recristallisée à 100%.

Cette figure permet également de montrer l'influence de la déformation avant recristallisation sur la cinétique de croissance de grains. Il est assez clair que quel que soit le niveau de déformation, la taille de grains moyenne va augmenter au cours du traitement thermique. La microstructure étant 100% recristallisée, la force motrice pour le mouvement des joints de grains est due à la courbure des joints de grains. Ainsi, les plus gros grains vont croître aux dépens des plus petits grains de leur voisinage. La figure 3-10 montre que le niveau de déformation avant recristallisation influence particulièrement la taille de grain moyenne en fin de recristallisation. Ce niveau de déformation influence également la distribution de taille de grains (figure 3-7).

La cinétique de croissance des grains d'une microstructure recristallisée dépend à la fois de la taille moyenne des grains mais également de la distribution de ces tailles. En effet, on note sur la figure 3-10 que pour deux microstructures 100% recristallisées ayant la même taille de grains moyenne la cinétique de croissance est différente. Pour un même matériau, seule l'hétérogénéité de taille de grains est responsable d'un tel phénomène. Dans le cas d'une microstructure recristallisée hétérogène, les gros grains vont avoir plus de facilité à croître au départ aux dépens des petits grains, ce qui va accélérer la croissance de grains par rapport à un cas plus homogène. Une fois que tous les petits grains auront disparu, la taille moyenne des grains va augmenter plus lentement. On suspecte donc une microstructure moins homogène pour une déformation équivalente de 1,3 par rapport à l'échantillon déformé à 2,8.

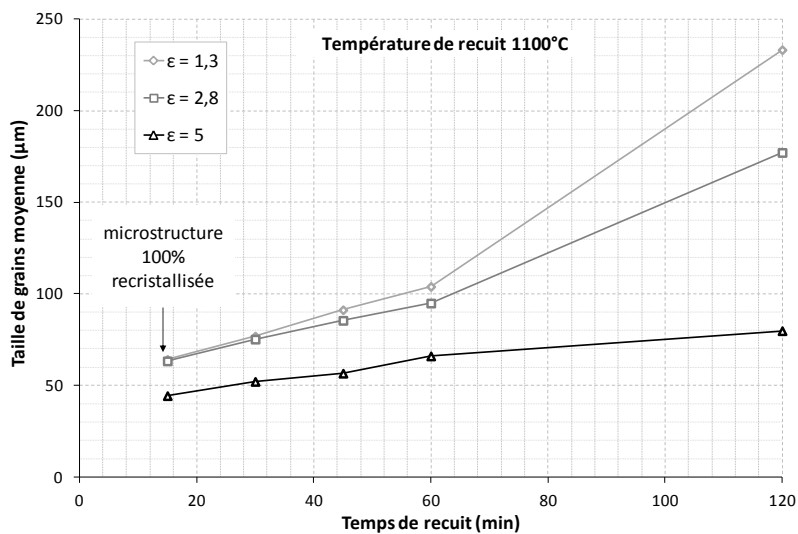


Figure 3-10. Croissance de grains d'échantillons en tantale 100% recristallisés à une température de 1100°C pour trois niveaux de déformation en « swaging » avant recristallisation (Hupalo & Sandim 2001)

Il est surprenant de noter que la taille de grains augmente brutalement à partir de 60 min de traitement pour les deux niveaux de déformation les plus faibles. L'hétérogénéité de taille de grains ne peut pas expliquer l'augmentation brutale de cette taille de grains moyenne, puisqu'au bout de 60 min celle-ci a dû, au contraire, diminuer. On peut alors envisager une croissance anormale de certains grains dans la microstructure pour expliquer ce phénomène, par un mécanisme qu'il faudrait investiguer.

La température du recuit va également influencer la cinétique de croissance de grains. La figure 3-11 met en évidence l'augmentation de la taille de grains d'une microstructure recristallisée lorsque la température augmente pour un même temps de recuit (ici 90 min). Les

traitements thermiques sont appliqués à des microstructures déformées et chaque taille de grains résulte de la recrystallisation puis de la croissance de grains. L'étape de recrystallisation de la microstructure étant réalisée à différentes températures, il est difficile d'attribuer la variation de taille de grains uniquement à la croissance de grains. En effet, pour une déformation donnée, la microstructure de départ pour la croissance de grains peut ne pas être la même en termes de taille de grains moyenne et de sa dispersion car elle dépend de la température du recuit. Un recuit à plus haute température entraîne en général une taille de grains plus petite en fin de recrystallisation (la densité de germes augmente avec la température (Doherty et al. 1997)) et la cinétique de recrystallisation est plus rapide. A durée de palier thermique constante, le temps laissé à la croissance de grains est alors plus grand et cette croissance est accélérée du fait de l'augmentation de la mobilité des joints de grains. La dispersion de la taille de grains en fin de recrystallisation va favoriser le développement des gros grains aux dépens des très petits, ce qui va avoir pour effet de faire augmenter rapidement la taille de grains moyenne. Cet effet est exacerbé lorsque la température augmente et l'on observe, pour les niveaux de déformations les plus faibles, que la taille de grains moyenne augmente très significativement au dessus de 1200°C. Dans le cas du niveau de déformation le plus important, les microstructures intragranulaires étant plutôt homogènes, on peut supposer que la taille de grains en fin de recrystallisation est peu dispersée. La croissance de grains sera donc plus progressive.

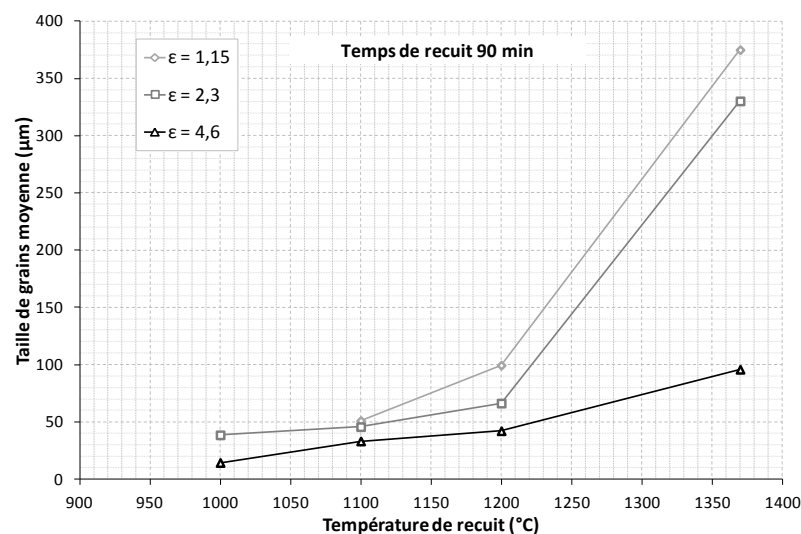


Figure 3-11. Taille de grains d'échantillons de tantale recrystallisés en fonction de la température de recuit (90 min) pour trois niveaux de déformation en ECAE avant recrystallisation (Mathaudhu & Hartwig 2006)

#### 4. Bilan

La littérature existante sur les évolutions microstructurales du tantale pendant un traitement thermique est assez restreinte mais en explore tous les aspects (restauration statique, recrystallisation statique discontinue et croissance de grains).

##### Restauration

Nous avons pu constater que la restauration était active dans le tantale à partir de 600°C. Cette restauration peut avoir une grande influence sur la recrystallisation qui va suivre.

Il est donc important de considérer pour tout traitement thermique le temps passé au dessus de 600°C.

### **Recristallisation**

La recristallisation dans le tantale est un phénomène discontinu basé sur le processus de germination/croissance. Suivant le niveau de déformation et la vitesse de chauffage, elle se déclenche entre 700°C et 1100°C. Très peu de données sont disponibles sur les cinétiques, c'est-à-dire sur l'évolution de la fraction recristallisée en fonction du temps de recuit et de la température. On peut noter qu'à 1100°C la recristallisation totale d'une microstructure de tantale déformé en « cold swaging » se fait en moins de 15 min quel que soit le niveau de déformation équivalente (dans la gamme de déformation considérée  $> 1,3$ ).

La majorité des travaux ont montré que la recristallisation du tantale était très hétérogène à l'échelle de la microstructure. Le déclenchement de la recristallisation ainsi que la densité de germes vont énormément dépendre de l'orientation cristallographique du grain déformé et de son comportement induit pendant la déformation. La microstructure en fin de recristallisation présente donc des hétérogénéités en termes de taille de grains et il se peut que des grains non recristallisés subsistent dans la microstructure.

La texture de recristallisation du tantale a principalement été caractérisée pour une déformation en laminage à froid. Elle présente les caractéristiques d'une texture de recristallisation classique après une déformation en laminage pour les métaux de structure cubique centrée avec une fibre  $\gamma$  renforcée et une fibre  $\alpha$  affaiblie.

### **Croissance de grains**

Les données disponibles de croissance de grains permettent de montrer que la vitesse d'augmentation de la taille moyenne des grains d'une microstructure entièrement recristallisée dépend du temps, de la température et de la distribution de taille de grains en fin de recristallisation. Si la taille de grains est homogène, la vitesse de croissance moyenne sera relativement constante en fonction du temps.

## **II. ETUDE DE LA RECRISTALLISATION DU TANTALE ET IDENTIFICATION D'UNE LOI DE RESTAURATION**

---

Dans la suite de cette partie, nous allons compléter les données de la littérature par de nouvelles caractérisations de la recristallisation du tantale. Tout d'abord, étant donné la modification de la loi de conversion entre la dureté Vickers et la densité de dislocations équivalente (partie 2), la loi de restauration du tantale proposée dans (Houillon 2009) sera réidentifiée. Après avoir montré les phénomènes de recristallisation et de croissance de grains grâce à une technique innovante de traitement thermique in situ, nous allons nous focaliser sur l'évolution de la fraction recristallisée en fonction du temps dans la gamme de température 1000°C-1100°C. L'intérêt sera d'évaluer l'influence des paramètres thermomécaniques sur la recristallisation et la croissance de grains et de produire un jeu de données expérimentales afin de calibrer puis de valider le modèle de recristallisation développé dans la première partie.

### 1. Identification des paramètres de la loi de restauration du tantale

La loi de restauration utilisée dans (Houillon 2009) présentée dans la partie 1 (équation 1.19) doit être réidentifiée car la loi de conversion dureté Vickers / densité de dislocations équivalente a été modifiée (voir partie 2 section II.2).

$$\frac{d\rho}{dt} = -\lambda(\rho - \rho_{inf})^2 e^{-\frac{Q_r}{kT}} \quad \text{Equation 1.19}$$

Nous allons réutiliser les expériences réalisées par (Houillon 2009) pour identifier les paramètres de cette loi et convertir les niveaux de dureté en densité de dislocations équivalente à l'aide de la nouvelle relation de conversion.

Quatre échantillons de compression présentant quatre niveaux de dureté différents sont traités à 600°C (palier de 45 min) et à 800°C (palier de 36 min) avec une pente de chauffage d'environ 20°C/min. Une mesure de dureté Vickers HV0,3 /5 est alors réalisée après traitement thermique. Dans ces gammes de température et pour ces échantillons, il n'y a pas de recristallisation. Le tableau 3-1 récapitule les traitements réalisés, les mesures de dureté Vickers et leurs conversions en densité de dislocations équivalente.

**Tableau 3- 1. Données expérimentales utilisées pour identifier les paramètres de la loi de restauration**

Echantillon	Traitement thermique	avant traitement		après traitement	
		HV0,3 /5	$\rho_{eq}$	HV0,3 /5	$\rho_{eq}$
1	600°C / 4440 s	177	20,9	157	12
2	600°C / 4440 s	170	17,3	161	13,5
3	800°C / 4500 s	163	14,3	139	6,8
4	800°C / 4500 s	160	13,1	134	5,7

Les paramètres de la loi à identifier sont :  $\lambda$ ,  $\rho_{inf}$  et  $Q_r$ . Par minimisation de l'erreur au sens des moindres carrés, on obtient les valeurs suivantes :

$$\begin{aligned} \lambda &= 0,78 \text{ s}^{-1} \\ \rho_{inf} &= 4,1 \\ Q_r &= 1,29 \times 10^{-19} \text{ J/at} \end{aligned}$$

Des mesures à des temps intermédiaires seraient nécessaires pour valider notamment la forme de la loi de restauration. On peut néanmoins voir que cette loi prédit une activité significative de la restauration à partir d'environ 600°C (figure 3-12), observation cohérente avec les résultats de la littérature vus dans la section I.1 de cette partie.

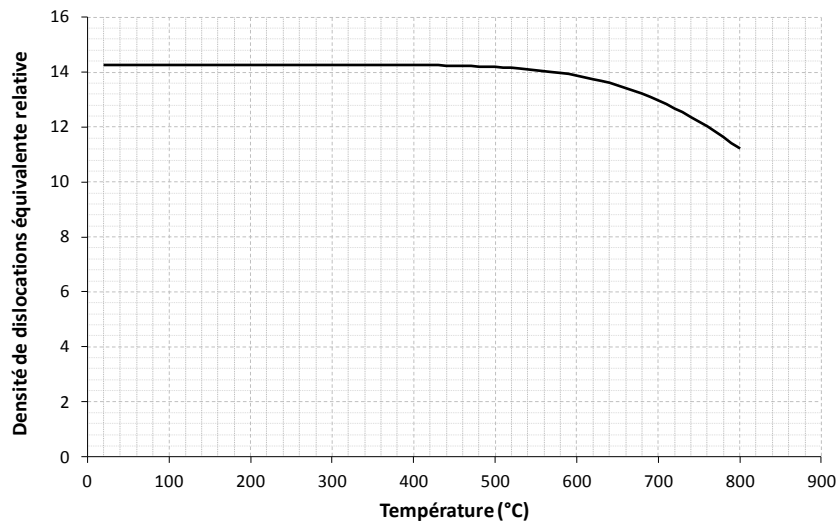


Figure 3-12. Evolution de la densité de dislocations par restauration statique en fonction de la température

## 2. Observation et caractérisation de la recristallisation statique : traitements thermiques in situ couplés à la technique EBSD

Les évolutions microstructurales lors d'un traitement thermique sont le plus généralement étudiées d'un point de vue statistique à partir d'échantillons « volumiques » afin d'obtenir des cinétiques de recristallisation, des tailles de grains ou des textures en fonction des paramètres thermomécaniques. Dans cette étude sur la recristallisation du tantale, nous avons opté pour l'observation de l'évolution d'une zone donnée d'une section métallographique. Une platine chauffante a été réalisée au Centre de Mise En Forme des matériaux à partir de celle développée par (Liao et al. 1998) pour être utilisée à l'intérieur de la chambre d'un Microscope Electronique à Balayage (MEB). L'échantillon monté sur la platine peut ainsi subir une série de traitements thermiques sous vide secondaire avec des rampes de températures contrôlées pouvant être très rapides (100°C/s) (Bozzolo et al. 2012). Après chaque traitement, les évolutions microstructurales sont mises en évidence grâce à la technique EBSD. Ce système de chauffage a permis d'atteindre des températures entre 750°C et 1030°C pour cette étude, et des températures similaires ont été utilisées dans d'autres études réalisées avec le même système sur un acier 304L (Ke Huang 2011), des alliages de Zirconium (Gaudout 2009) et déjà sur du tantale (Houillon 2009). Cette gamme de température est supérieure à celles décrites dans la littérature pour d'autres systèmes de chauffage similaires. De plus, les évolutions microstructurales de la plupart des métaux ayant un intérêt industriel interviennent à ces températures.

Nous allons donc appliquer ce système à un échantillon de tantale déformé à froid afin d'observer la recristallisation et la croissance de grains. Cette expérience sera l'occasion de décrire comment il est possible d'analyser et quantifier la recristallisation par la technique EBSD. L'objectif sera également de voir dans quelle mesure il est possible d'extraire des données quantitatives utiles pour le modèle comme la mobilité des joints de grains ou la vitesse de germination. Cette technique étant plutôt nouvelle, nous essayerons également de mettre en lumière les artefacts possibles et d'évaluer leur influence sur l'analyse quantitative des méca-

nismes locaux de recristallisation et de croissance de grains. Ce travail a fait l'objet d'une publication soumise à « Journal of Microscopy – Oxford ».

#### A. DISPOSITIF ET PROCEDURE EXPERIMENTALE

Un échantillon de 3mm x 5mm d'une pièce en tantale de haute pureté sévèrement déformé à froid a été prélevé puis poli jusqu'à ce qu'il atteigne une épaisseur d'environ 300µm. L'échantillon a ensuite été attaqué pendant 45-60s dans une solution  $\frac{1}{4}$  HF +  $\frac{3}{4}$  HNO<sub>3</sub> pour obtenir l'état de surface nécessaire à une analyse EBSD. Cette technique de préparation d'un échantillon de tantale pour une analyse EBSD avec une attaque à l'acide fluorhydrique est décrite dans l'annexe A3.

Le système de chauffage (Bozzolo et al. 2012) est monté à l'intérieur de la chambre d'un microscope électronique à balayage XL30 ESEM équipé d'un système EBSD TSL-EDAX. La platine est alors positionnée afin que la surface analysée soit inclinée à 70° pour se placer dans les conditions d'acquisition des données en EBSD (figure 3-13). L'échantillon est soudé sur un ruban de tantale très fin (30 µm). Le ruban de tantale est chauffé par effet Joule, chauffant ainsi l'échantillon par conduction. La température est mesurée et contrôlée par deux thermocouples soudés sur la surface de l'échantillon.

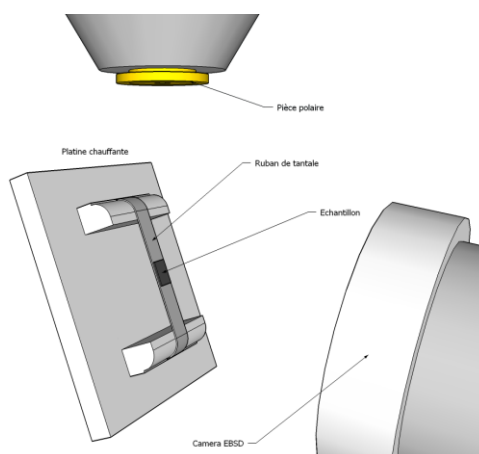
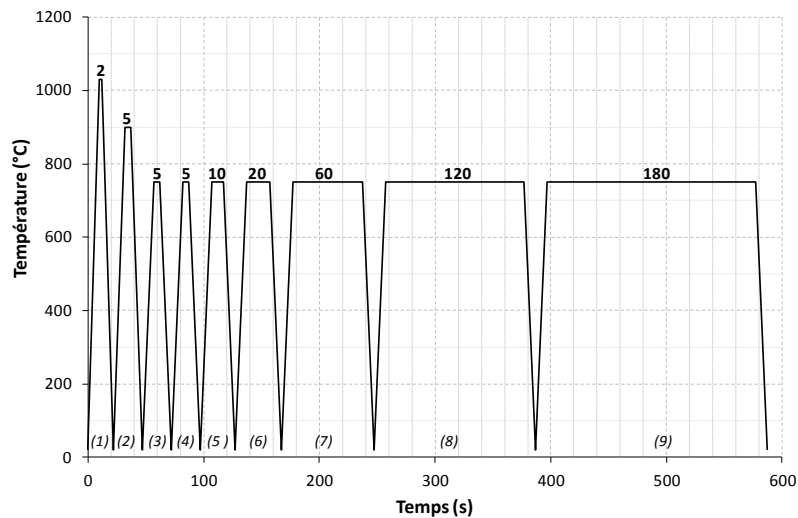


Figure 3-13. Vue schématique du dispositif de traitement thermique *in situ*

D'après la revue bibliographique réalisée en annexe (annexe A7), ce système semble le plus adapté pour mettre en évidence de manière originale la recristallisation et la croissance de grains dans le tantale. Il va permettre d'atteindre les températures caractéristiques pour le déclenchement de la recristallisation du tantale (entre 800 et 1100°C). La vitesse de chauffage rapide permet également de ne pas perturber le déclenchement de la recristallisation par une restauration possible lors de la montée en température.

L'échantillon de tantale a été soumis à 9 traitements thermiques (figure 3-14) successifs d'une température de 1030°C au départ pour déclencher la recristallisation, à une température de 750°C par la suite pour ralentir la cinétique de recristallisation et de croissance de grains, afin de pouvoir capter ces évolutions de la microstructure. Le temps de chaque traitement thermique a été ajusté en fonction des cinétiques propres à chaque évolution métallurgique. Entre chacun de ces traitements, la microstructure a été analysée par EBSD.





**Figure 3-14.** Séquence des traitements thermiques subis par l'échantillon de tantale sévèrement déformé à froid (le temps de chaque traitement est indiqué au dessus du palier et chaque étape de la séquence est identifiée par un chiffre entre parenthèses)

#### B. ANALYSE DES MICROSTRUCTURES DE RECUIT PAR EBSD

Dans le cas de cette expérience in situ, les mesures EBSD ont été réalisées avec un système TSL-EDAX. Les conditions d'acquisition de ces données ont été ajustées de manière à trouver un compromis entre la qualité des clichés de diffraction, la résolution spatiale et le temps d'acquisition. Le pas de mesure est de 2  $\mu\text{m}$  pour une cartographie de 350  $\mu\text{m}$  x 600  $\mu\text{m}$ . Les cartographies ont ensuite été analysées avec le logiciel TSL OIM Data Analysis. Une désorientation minimale de 5° a été choisie pour définir les joints de grains et les pixels ayant une désorientation supérieure à 5° avec l'ensemble de leurs premiers voisins sont considérés comme mal indexés. Ces pixels ne seront pas pris en compte et apparaîtront en noir sur les cartographies EBSD, comme pour les points non indexés. Les grains recrystallisés sont identifiés à partir de la méthode décrite dans l'annexe A8.

Le premier résultat que l'on obtient grâce au système de recuit in situ couplé à l'analyse EBSD est l'observation quasi directe de la progression de la recrystallisation et de la croissance de grains pour une microstructure locale donnée (figure 3-15). Sur cette figure, les phénomènes de germination et croissance peuvent clairement être observés entre l'étape 1 et l'étape 5. Les quatre étapes suivantes montrent la croissance de grains après recrystallisation totale de la microstructure. Les différents stades identifiés sur cette figure vont être analysés plus en détails dans la suite.

La surface analysée avec cette technique est petite en comparaison de surfaces nécessaires pour réaliser une analyse statistique de la recrystallisation. Le comportement observé n'est donc pas représentatif du matériau en termes de taille de grains moyenne, de texture globale ou encore d'énergie stockée macroscopique. La technique de recuit in situ donne accès aux mécanismes locaux de recrystallisation et de croissance de grains. Une cinétique de recrystallisation représentative pourrait être mesurée uniquement si le nombre de grains était statistiquement représentatif du matériau dans la zone analysée.

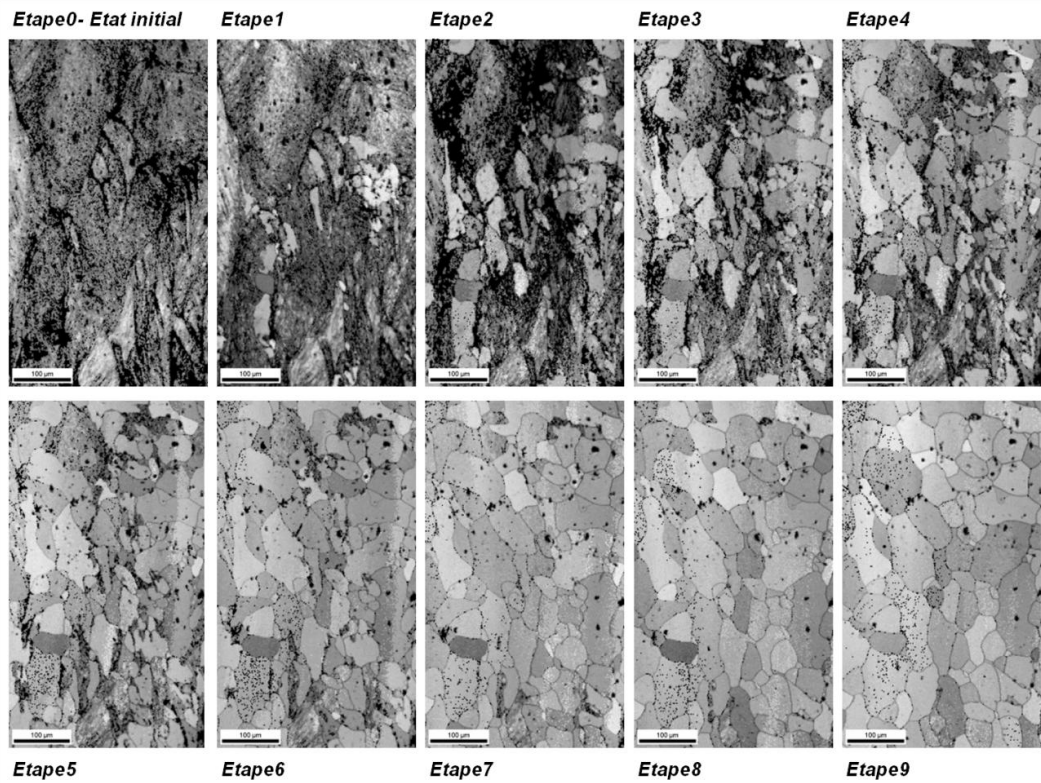


Figure 3-15. Evolution de la microstructure pendant la séquence de traitement thermique (cartographies d'IQ [Image Quality] obtenues par l'analyse EBSD)

### C. GERMINATION

La recristallisation statique discontinue est basée sur le processus de germination/croissance. Cependant, une distinction claire entre ces deux stades est difficile (B. Hutchinson 1992). La germination est définie comme l'instant auquel un petit élément de volume du matériau a atteint les conditions critiques pour croître dans la matrice déformée. Lorsqu'un nouveau grain recristallisé est identifié dans la microstructure, cela signifie qu'un germe a été « activé » et a crû. Cette phase transitoire qu'est la germination est ainsi indirectement observée par l'apparition de nouveaux grains dans la microstructure. Il est également bon de noter que cette analyse dépend également de la résolution spatiale de l'analyse EBSD. De nouveaux grains recristallisés pourront être détectés plus tôt si la résolution spatiale est plus élevée.

La germination va principalement être observée à l'étape 1 de la séquence de traitements thermiques (étape 1 – figure 3-15) mais de nouveaux grains recristallisés vont également apparaître de manière continue jusqu'au stade 5 (figure 3-16.a). A partir du nombre de nouveaux grains apparus par unité de surface et de temps, on peut estimer un taux de germination par :

$$\dot{N} = \frac{N}{S \cdot t} \quad \text{Equation 3.1}$$

Avec  $N$  le nombre de nouveaux grains apparus sur la surface observée  $S$  ( $350 \mu\text{m} \times 600 \mu\text{m}$ ) pendant un traitement thermique de temps  $t$ . Les évolutions temporelles du nombre de grains recristallisés et du taux de germination sont présentées figure 3-16. Le taux de germination la plus élevée correspond au premier traitement thermique réalisé à la plus haute tempé-

rature (1030°C) (figure 3-16.a). A ce stade, le taux de germination est de  $2,3 \times 10^8 \text{ m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Dans les étapes suivantes, la diminution de température ainsi que la réduction du nombre de sites de germination potentiels entraîne une diminution du taux de germination (figure 3-16.b). Il est important de préciser que certains des grains observés sur la surface pourraient provenir de la croissance de grains recristallisés apparus plus tôt à une certaine distance sous la surface libre. Ce biais ne peut être évité qu'en réalisant une expérience 3D.

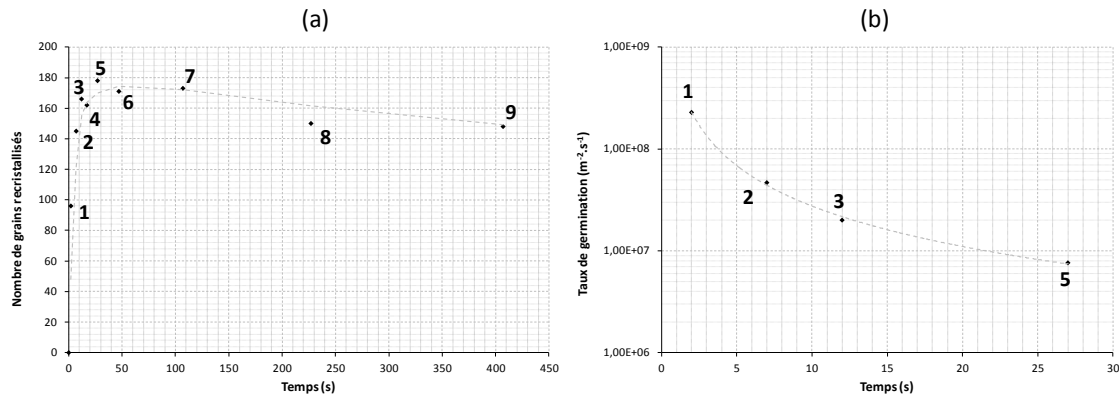


Figure 3-16. (a) Evolution du nombre de grains recristallisés pendant la séquence de traitements thermiques  
(b) Taux de germination estimé pour les étapes 1, 2, 3 et 5

Pour être activé à une température donnée, un germe doit remplir 2 conditions :

- Etre suffisamment désorienté cristallographiquement par rapport à son voisinage direct,
- Avoir un bilan énergétique favorable entre l'énergie d'interface créée et l'énergie stockée dans le voisinage qui est libérée lors de la croissance du germe (i.-e. avoir une taille critique).

Lors du premier traitement thermique, les nouveaux grains sont apparus dans les zones présentant les plus fortes désorientations locales du réseau cristallin (figure 3-17). De fortes désorientations intragranulaires traduisent une forte énergie stockée et peuvent favoriser la formation de joints à grand angle de désorientation, avec une mobilité suffisante.

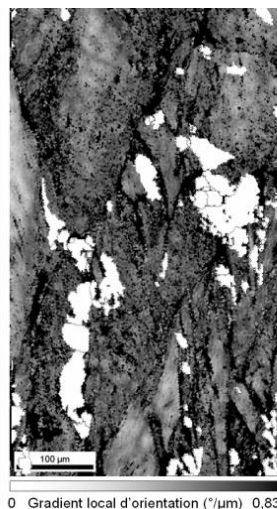


Figure 3-17. Localisation des nouveaux grains recristallisés observés après un traitement thermique à 1030°C pendant 2 s. Les nouveaux grains (en blanc) sont repositionnés sur la cartographie des désorientations intragranulaires de l'état initial.

Lors de cette expérience de traitement thermique *in situ*, la germination apparaît comme continue. Ceci indique donc des temps d'incubation différents pour les différents germes (le temps d'incubation étant le temps nécessaire à un embryon pour atteindre les conditions critiques de croissance). La détermination d'une vraie cinétique de germination ne serait possible qu'en réalisant une séquence de traitements à température constante. Dans notre cas, la décroissance du nombre de germes activés au cours du temps n'est pas due uniquement à la réduction du nombre de sites potentiels de germination mais également à la diminution de la température de recuit. Une cinétique de germination pourrait également être perturbée par les grains ayant crû sous la surface mais cet artefact est directement lié à l'observation d'une microstructure en 2D. Cet effet pourrait être quantifié en réalisant une simulation 3D à champ complet de la recristallisation (Bernacki et al. 2009; Bernacki et al. 2011) pour évaluer la quantité de grains venant de sous la surface. Dans les travaux cités, seul un petit nombre de germes a été introduit dans la microstructure déformée. Des développements seraient nécessaires pour prendre en compte un nombre suffisant de grains recristallisés.

#### D. CROISSANCE DES GRAINS RECRISTALLISES DANS LE MATERIAU DEFORME

---

La différence de densité de dislocations entre un germe activé et son environnement est la source principale de force motrice pour la croissance des grains recristallisés dans la matrice déformée. Dans la séquence évoquée ici, ce phénomène peut être observé jusqu'au stade 5.

Les nouveaux grains recristallisés croissent rapidement. Pour estimer la vitesse moyenne de migration des joints de grains pendant la recristallisation à 750°C, un ensemble aléatoire de 10 grains a été choisi dans la microstructure de l'étape 1. En supposant les grains comme des disques parfaits sur la section 2D observée, leur taille a été mesurée jusqu'à l'étape 5 qui est le stade final de la recristallisation. A partir de ces données, une vitesse moyenne de croissance du diamètre équivalent est calculée pour chacun de ces grains. La valeur moyenne de toutes ces vitesses donne une estimation de la vitesse moyenne d'augmentation du diamètre des grains recristallisés autour de 1.5  $\mu\text{m/s}$ . Si on considère maintenant l'évolution du diamètre moyen de tous les grains recristallisés (figure 3-18) pendant la phase de recristallisation à 750°C (étapes 3 à 5), on retrouve une vitesse de croissance du diamètre moyen de l'ordre de 1.5  $\mu\text{m/s}$ , ce qui donne une estimation de la vitesse moyenne de migration des joints de grains à 0.75  $\mu\text{m/s}$ . Cette valeur correspond à la vitesse de la trace du joint de grains sur la surface 2D, elle sera donc supérieure à la vitesse de migration normale au joint de grains.



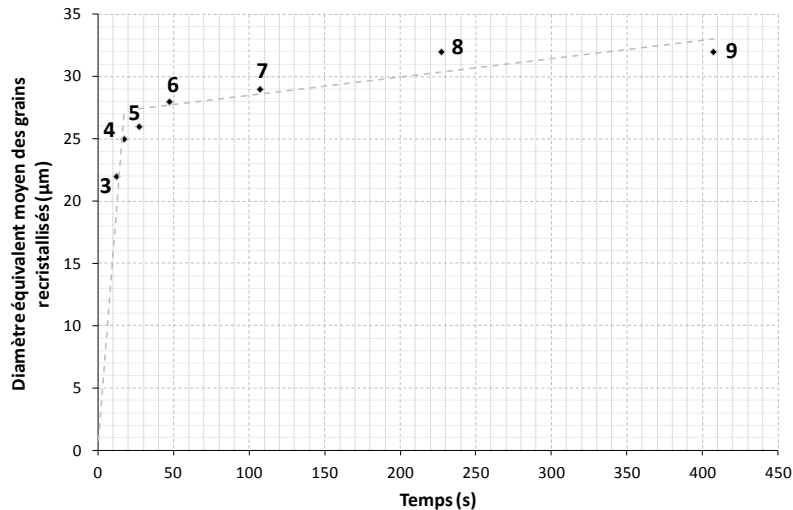


Figure 3-18. Evolution de la taille moyenne des grains recrystallisés (diamètre du cercle équivalent au grain) pendant la séquence de traitements thermiques. Seul les points obtenus à une température de 750°C sont considérés (étapes 3 à 9)

A partir des cartographies EBSD, la migration des joints de grains peut être observée et reliée aux forces motrices locales. La figure 3-19 illustre la croissance des grains recrystallisés pendant les étapes 3 à 5. Les cartographies de cette figure représentent la valeur du KAM par unité de longueur. Comme nous avons pu l'évoquer dans la deuxième partie de ce manuscrit, le KAM par unité de longueur peut être relié à la densité de dislocations géométriquement nécessaires avec donc une valeur faible pour les grains recrystallisés ou les zones intragranulaires à faibles énergies stockées. Au cours de la recrystallisation, la migration des joints de grains est principalement pilotée par la différence de densité de dislocations entre les grains voisins. La microstructure évoluera plus rapidement là où la densité de dislocations est forte comme montré pour les grains marqués d'un symbole vide. Dans les zones où le réseau cristallin est moins perturbé, les joints de grains stagnent (flèches blanches). La différence de migration le long d'un même joint de grains va donc entraîner des courbures locales importantes de ces interfaces. Cela aura pour effet d'augmenter la contribution des forces capillaires à la force motrice totale (Zhang et al. 2011; Martorano et al. 2007).

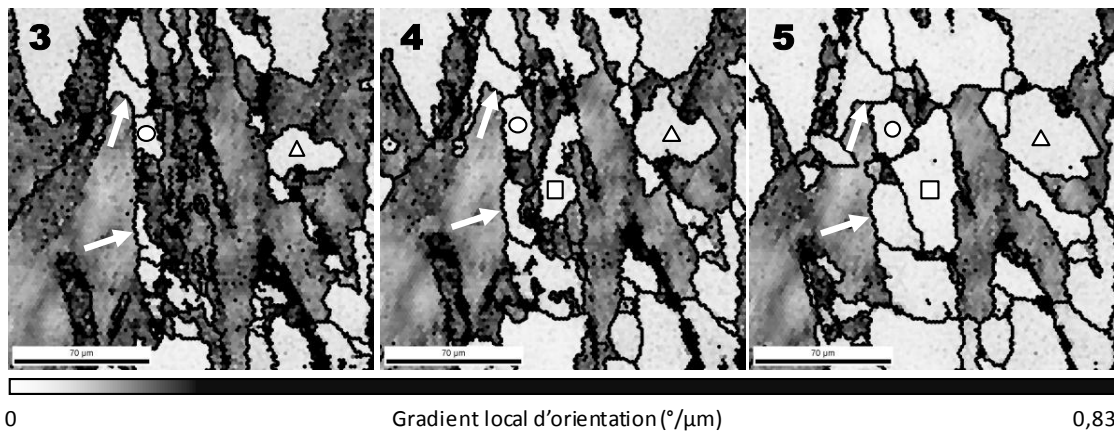


Figure 3-19. Migration des joints de grains pendant la croissance des grains recrystallisés des étapes 3 à 5. La microstructure est montrée en utilisant des cartographies du gradient de désorientations intragranulaires (KAM).

### E. CROISSANCE DE GRAINS APRES LA RECRISTALLISATION

Lorsque la microstructure est totalement recrystallisée, s'en suit une phase de croissance des grains recrystallisés (étapes 6 à 9 sur la figure 3-15). Comme prévu, les gros grains croissent aux dépens des plus petits pour minimiser la quantité totale de joints de grains. Une illustration de la migration de joints entre grains recrystallisés lors du dernier traitement thermique est donnée figure 3-20. Ce phénomène va évidemment faire diminuer le nombre total de grains (figure 3-16.a).

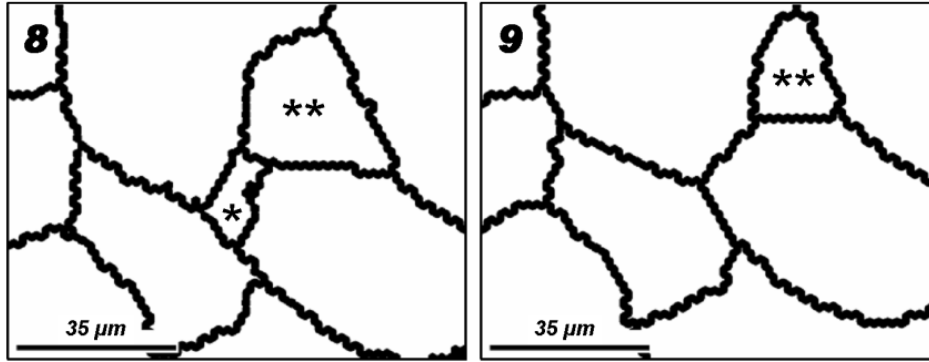


Figure 3-20. Disparition (\*) et décroissance (\*\*) de petits grains lors du traitement thermique 9 dans le régime de croissance de grains

Lors de la croissance de grains, la vitesse d'augmentation du diamètre équivalent moyen des grains est 100 fois plus faible que celle précédemment calculée en régime de recrystallisation. Cette vitesse moyenne est d'environ 0,015 µm/s.

Le rapport des vitesses de migration des joints de grains entre les régimes de recrystallisation et de croissance de grains est directement lié à la différence de force motrice responsable de cette migration. L'énergie stockée dans le matériau sous forme de dislocations est estimée par (Humphreys & Hatherly 2004) :

$$\Delta E_{ReX} \approx 0.5\rho Gb^2 \quad \text{Equation 3.2}$$

Avec  $\rho$  la densité de dislocations moyenne,  $G$  le module de cisaillement ( $= 69 \times 10^9 \text{ N.m}^{-2}$ ) et  $b$  la norme du vecteur de Burgers ( $= 2,86 \times 10^{-10} \text{ m}$ ).

Une estimation de la densité de dislocations moyenne de l'état déformé peut être calculée à partir de la formule reliant la densité de dislocations géométriquement nécessaires (GND) à la désorientation intragranulaire  $\theta$  (Kubin & Mortensen 2003) :

$$\rho_{GND} = \frac{2\theta}{xb} \quad \text{Equation 3.3}$$

Avec  $x$  le rayon du kernel ( $= 6 \text{ µm}$ ) et  $b$  la norme du vecteur de Burgers.  $\theta$  est directement mesuré par la technique EBSD par le calcul du Kernel Average Misorientation (KAM, cf annexe A6).

Pour cette microstructure initiale, la valeur moyenne de la distribution des désorientations intragranulaires est de  $9 \times 10^{-3} \text{ rad.µm}^{-1}$ . La densité moyenne de dislocations géométriquement nécessaire est donc d'environ  $6 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ . Cette valeur de densité de dislocations

paraît toutefois plus faible que la valeur attendue pour un état sévèrement déformé, ce qui n'est pas étonnant en raison de l'approche utilisée. Premièrement, cette analyse ne prend en compte que les dislocations géométriquement nécessaires (GND) et non la densité de dislocations totale incluant également les dislocations statistiquement stockées (SSD). Deuxièmement, l'analyse EBSD, telle qu'elle a été réalisée, ne permet pas de bien résoudre les zones les plus déformées de la microstructure. La valeur moyenne des désorientations intragranulaires est ainsi sous-estimée. La densité de dislocations ainsi calculée est donc une borne inférieure de la densité de dislocations totale. Dans la suite, nous considérerons une valeur moyenne de l'ordre de  $10^{15} \text{ m}^{-2}$  (Hosseini & Kazeminezhad 2009) pour l'état déformé et cette valeur donne une force motrice d'environ  $3 \times 10^6 \text{ N.m}^{-2}$ .

Pour la croissance de grains, seuls les effets capillaires sont responsables du mouvement des joints de grains. La force motrice associée est donnée par (Humphreys & Hatherly 2004) :

$$\Delta E_{GG} \approx \frac{2\gamma_s}{R} \quad \text{Equation 3.4}$$

Avec  $\gamma_s$  l'énergie de surface moyenne des joints de grains (estimée à partir de l'équation (1.10) par  $Gb/48 = 0,41 \text{ J.m}^{-2}$ ) et  $R$  le rayon de courbure moyen. Pour un rayon moyen des grains recristallisés de  $15 \mu\text{m}$ , la force motrice est d'environ  $3 \times 10^4 \text{ N.m}^{-2}$ . A partir de ces calculs assez simples, on retrouve un rapport autour de 100 entre les forces motrices en recristallisation et en croissance de grains, qui correspond à l'ordre de grandeur du rapport des vitesses de migration des joints de grains observé dans le cas de cette expérience *in situ*.

#### F. ESTIMATION DE LA MOBILITE DES JOINTS DE GRAINS A $750^\circ\text{C}$

La vitesse moyenne de migration des joints de grains  $v$  est directement liée à la force motrice  $\Delta E$  par la mobilité des joints de grains  $m$  (Humphreys & Hatherly 2004) :

$$v = m\Delta E \quad \text{Equation 3.5}$$

En utilisant les valeurs calculées de vitesse de migration et de force motrice dans le régime de croissance de grains, on obtient une mobilité moyenne  $m \approx 1 \times 10^{-13} \text{ m}^4.\text{J}^{-1}.\text{s}^{-1}$  à  $750^\circ\text{C}$ . Afin de vérifier la cohérence de cette valeur de mobilité, nous allons la comparer avec une valeur théorique calculée à partir des données de la littérature.

La mobilité s'exprime généralement à l'aide d'une loi d'Arrhénius avec une énergie d'activation  $Q_m$  et un terme pré-exponentiel  $m_0$  (équation 1.15). L'énergie d'activation pour la migration des joints de grains est généralement considérée comme la moitié de l'énergie d'activation pour l'autodiffusion (Humphreys & Hatherly 2004). A partir des données de (Richards et al. 2003), l'énergie d'activation  $Q_m$  pour le tantale est approximée à  $180 \text{ kJ.mol}^{-1}$ . En ce qui concerne le terme pré-exponentiel, il s'exprime par (Stüwe et al. 2002) :

$$m_0 \approx \frac{D_0 V}{bRT} \quad \text{Equation 3.6}$$

Où  $V$  est le volume molaire ( $= 10,85 \times 10^{-6} \text{ m}^3.\text{mol}^{-1}$ ),  $b$  la norme du vecteur de Burgers et  $T$  la température.  $D_0$  est le coefficient d'autodiffusion que l'on peut calculer à partir de (Benard et al. 1969) :

$$D_0 \approx 7a^2\nu$$

Equation 3.7

Avec  $a$  le paramètre de maille ( $=0,33$  nm) et  $\nu$  la fréquence de Debye (généralement donnée autour de  $10^{13}$  s<sup>-1</sup> (Stüwe et al. 2002)). En utilisant la valeur  $D_0 \approx 0,07$  cm<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>, la mobilité des joints de grains théorique à 750°C est de  $2,2 \times 10^{-14}$  m<sup>4</sup>.J<sup>-1</sup>.s<sup>-1</sup>, ce qui est assez proche de la valeur extraite de l'expérience de recuit *in situ*. Ces deux valeurs sont approximées et pourraient être discutées plus en détails, mais l'intérêt ici est de montrer que les mesures faites à partir de cette technique sont cohérentes avec les données de la littérature. De plus, la chimie du tantale pourrait jouer un rôle essentiel dans la valeur de la mobilité étant donné qu'une petite quantité d'éléments en solution solide peut facilement faire varier la mobilité d'un ordre de grandeur (Humphreys & Hatherly 2004).

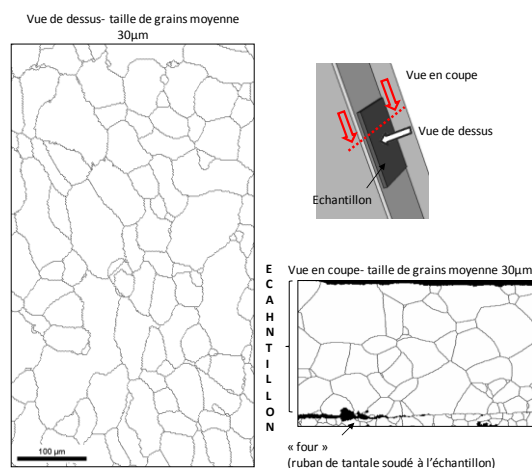
#### G. OBSERVATION DE LA RECRISTALLISATION : SURFACE VS VOLUME

Le principe même de la technique de recuit *in situ* est d'observer les évolutions microstructurales sur une surface libre. Cependant, le fait d'introduire cette surface libre dans la microstructure peut potentiellement influencer le déroulement de la recristallisation et de la croissance de grains. Dans la littérature, plusieurs analyses ont été réalisées afin d'évaluer l'effet de la surface libre sur les évolutions métallurgiques. Deux méthodes ont été employées :

- Comparaison des microstructures en surface et au cœur de l'échantillon « *in situ* »,
- Comparaison de la microstructure en surface de l'échantillon *in situ* avec une microstructure à cœur d'un échantillon ayant subi le même traitement dans un four classique.

De ces études, il ressort que les cinétiques de recristallisation et les tailles de grains finales sont similaires (Liao et al. 1998; Hurley & Humphreys 2004), ce qui confirme nos observations sur le tantale. Dans le cas de l'aluminium, les études ont également montré que la surface libre n'avait pas d'effet sur la migration des joints de grains (Lens et al. 2005; Y. Huang & Humphreys 1999). Néanmoins, certains auteurs ont tout de même noté certaines différences entre la microstructure en surface et celle à cœur sur un même échantillon dans le cas d'un acier sans interstitiels (IF steel) (Nakamichi et al. 2008). Ils suggèrent toutefois que les différences observées pourraient provenir d'un gradient de température dans l'épaisseur de l'échantillon. Afin de confirmer que la surface libre a peu d'effet sur les mécanismes de recristallisation et de croissance de grains dans le cas du tantale, l'échantillon ayant subi la séquence entière de traitements thermiques a été découpé perpendiculairement à la surface libre. La tranche a ensuite été polie pour une analyse EBSD. La figure 3-21 montre une comparaison des microstructures sur la surface et sur la tranche. Cet échantillon ne présente pas de différence significative entre la surface et le cœur avec une taille de grains similaire autour de 30 μm. Le système utilisé n'induit donc pas de gradient de température dans l'épaisseur de l'échantillon et la surface libre ne génère pas de force de freinage supplémentaire (gravage thermique des joints de grains) empêchant les grains de croître comme dans le volume.





**Figure 3-21. Observation de la microstructure dans une coupe perpendiculaire à la surface libre et comparaison avec la microstructure de la surface libre**

Grâce à ce système de chauffage in situ permettant d'atteindre une température de 1200°C à des vitesses de 100°C/s (en chauffage et refroidissement), nous avons pu observer et caractériser de manière originale la recristallisation statique et la croissance de grains dans le tantale. Les phénomènes observés sur la surface correspondent aux mécanismes connus d'évolution de la microstructure durant un traitement thermique. Cette technique n'induit pas de biais influençant de manière significative les résultats et il apparaît possible de déduire de cette expérience des données quantitatives comme la mobilité moyenne des joints de grains. En résumé, les faits établis et les grandeurs déterminées à partir de cette expérience sont les suivants :

- Les nouveaux grains recristallisés apparaissent dans les zones présentant les plus fortes désorientations intragranulaires.
- La germination est plutôt de type continu. Le nombre de germes diminue au cours du temps, les sites de germination devenant plus rares au fur et à mesure que la recristallisation progresse.
- Pendant la recristallisation, les joints des grains recristallisés peuvent être fortement tortueux en raison des variations locales d'énergie stockée. Ces joints de grains se régularisent pendant la croissance de grains et deviennent plus rectilignes.
- La mobilité moyenne, estimée en 2D, des joints de grains à 750°C est de l'ordre de  $1 \times 10^{-13} \text{ m}^4 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ .
- L'énergie d'activation de la migration des joints de grains estimée à partir des données de la littérature est  $Q_m \approx 180 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ .
- Le terme pré-exponentiel de loi d'Arrhénius pour la mobilité peut être évalué à  $m_0 \approx 3,4 \times 10^{-5} \text{ m}^4 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ .

En l'état, cette étude ne permet pas encore d'accéder à toutes les données nécessaires à la modélisation du phénomène de recristallisation. Cette technique ne permet notamment pas d'acquérir des données statistiquement représentatives du matériau comme les cinétiques de recristallisation. C'est pourquoi nous allons par la suite utiliser des techniques de traitements thermiques plus classiques pour caractériser la recristallisation.

### 3. Déclenchement de la recristallisation et densité de dislocations équivalente critique

La première étape de caractérisation de la recristallisation va consister à identifier les conditions thermomécaniques nécessaires pour déclencher la recristallisation statique du tantale. Depuis le début de cette étude, nous avons fait le choix de décrire la microstructure de l'état déformé par une densité de dislocations équivalente représentative à la fois de l'histoire de déformation et de vitesse de déformation. L'objectif est donc de déterminer, à une température donnée, pour quelle valeur critique de densité de dislocations équivalente le tantale recristallise et ainsi de définir une courbe de densité de dislocations équivalente critique en fonction de la température.

La démarche mise en œuvre pour établir cette courbe critique pour le déclenchement de la recristallisation est de réaliser des éprouvettes à gradient de densité de dislocations. Ces éprouvettes seront ensuite recuites à plusieurs températures et leurs microstructures seront observées pour déterminer à partir de quelle valeur de densité de dislocations équivalente apparaissent les grains recristallisés.

L'idée est de partir d'un essai de compression uniaxiale simple et d'accentuer les hétérogénéités de déformation dues au frottement par une hétérogénéité due à la géométrie de l'éprouvette. Une première solution serait de remplacer l'éprouvette cylindrique classique par une éprouvette conique (Manonukul & Dunne 1999). Une fois déformée, cette éprouvette présente des gradients de déformations qui sont non monotones et fortement dépendant des conditions de frottement. Ces éprouvettes sont alors difficilement exploitables pour déterminer une densité de dislocations critiques. Pour pallier cela, le pion cylindrique classique peut être remplacé par une éprouvette « double cône » proposée par Weaver et Semiatin (Weaver & Semiatin 2007) pour étudier la recristallisation dynamique dans un super alliage base nickel. L'éprouvette se compose de deux cônes inversés séparés par une partie cylindrique (figure 3-22). Cet essai présente une répartition hétérogène mais concentrique de la déformation au niveau du plan perpendiculaire à l'axe de compression passant par le milieu de la partie cylindrique. Il induit donc un gradient de densité de dislocations entre le centre de l'éprouvette et le bord qui de plus ne dépend pas du frottement.

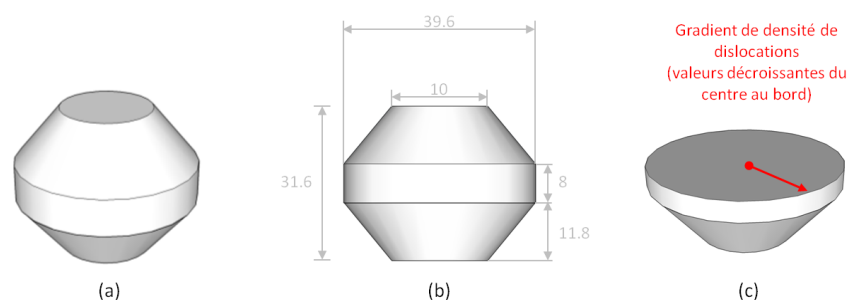


Figure 3-22. Vue 3D de l'éprouvette "double cône" (a) de ses dimensions (b) et de la localisation du gradient de densité de dislocations que l'on souhaite exploiter après déformation (c)

Nous avons optimisé cette éprouvette « double cône » (ou DECC pour « Double Cône Compression ») par simulation numérique basée sur la méthode des éléments finis afin de satisfaire deux critères principaux :

1. L'éprouvette doit pouvoir être usinée dans une tôle de 11 mm d'épaisseur

2. Le gradient de densité de dislocations équivalente doit être le plus fort possible, c'est-à-dire que le centre doit présenter une densité de dislocations la plus élevée possible alors que le bord de l'échantillon doit se déformer le moins possible.

La méthode d'optimisation de cette géométrie est détaillée dans l'annexe A9. Les différents paramètres de la géométrie retenue sont définis sur la figure 3-23 et rassemblés dans le tableau 3-2.

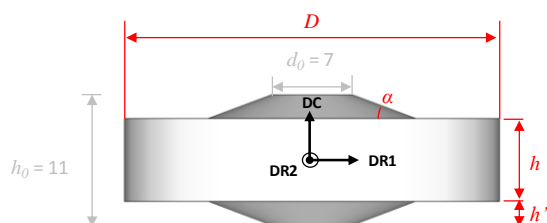


Figure 3-23. Géométrie de l'éprouvette DECC optimisée

Tableau 3-2. Paramètres de la géométrie choisie pour l'essai DECC

Paramètre	D (mm)	h (mm)	h' (mm)	$\alpha$ (°)
Valeur	30,6	7	2	22,5

L'éprouvette ainsi dimensionnée permet d'obtenir, lorsqu'on la comprime de 4 mm, un gradient de densité de dislocations entre le centre et le bord de l'éprouvette (figure 3-24.a). On voit également sur la figure 3-24.b que la densité de dislocations est homogène dans la direction DC sur une bande d'environ 1 mm de largeur autour du plan médian.

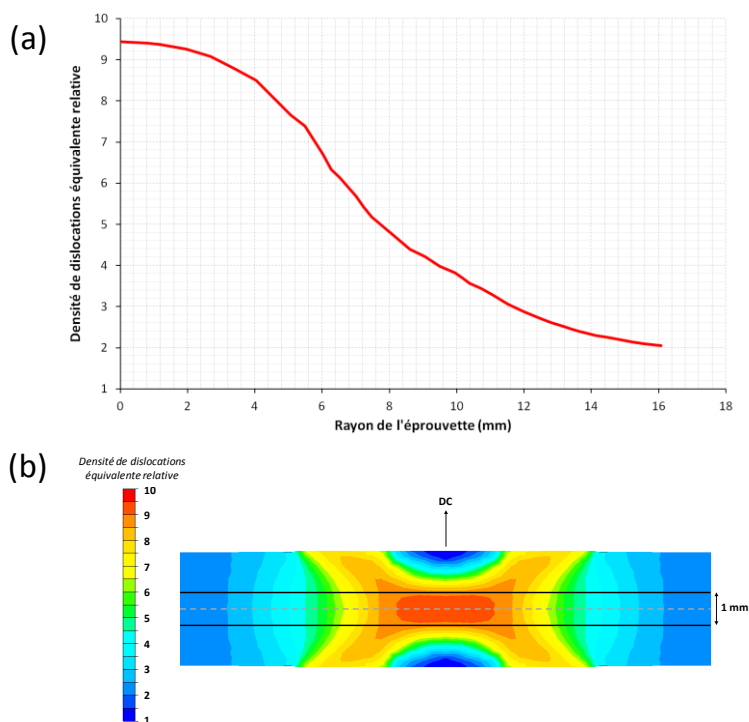


Figure 3-24. (a) répartition de la densité de dislocations équivalente le long d'un rayon de l'éprouvette optimisée et déformée à 0.1 mm/s (b) Cartographie de la densité de dislocations équivalente dans le plan (DR1, DC) dans le cas d'un contact collant

#### A. CARACTERISATION DU GRADIENT DE DENSITE DE DISLOCATIONS APRES DEFORMATION

Les essais ont été effectués à une vitesse de 0,1 mm/s et montrent une assez bonne corrélation avec la simulation numérique. La simulation de l'essai DECC permet de rendre compte de la courbe effort-déplacement (figure 3-25), et de la géométrie de l'éprouvette après déformation (au déchargement élastique près). On note également que la zone de contact entre les outils et l'éprouvette se déforme peu, ce qui confirme notre hypothèse de simulation d'un contact collant.

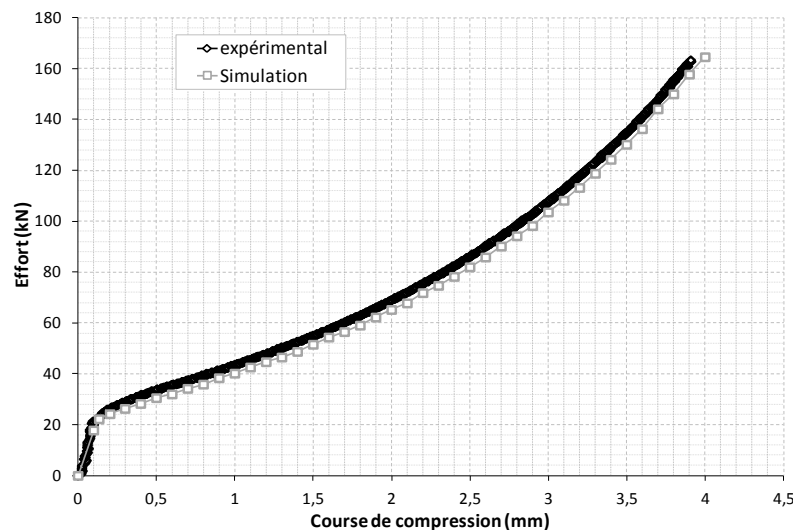
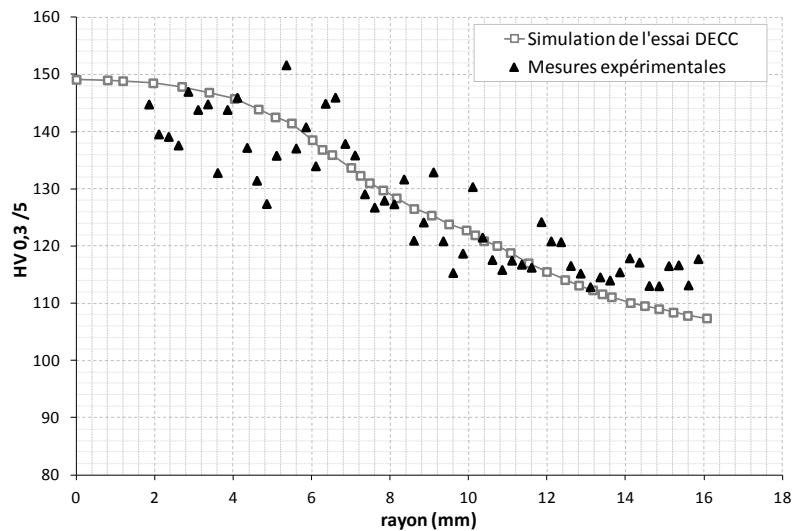


Figure 3-25. Evolution de l'effort dans l'axe de compression pour l'essai DECC à 0.1 mm/s (courbes expérimentales et numériques)

Expérimentalement, le gradient de densité de dislocations peut être mis en évidence par des mesures de microdureté Vickers comme vu dans la partie 2. Grâce à la loi HDD établie précédemment, les mesures de microdureté sont converties en densités de dislocations équivalentes et comparées aux valeurs obtenues numériquement (figure 3-26). Les mesures expérimentales montrent une assez grande dispersion ainsi qu'une variabilité importante entre deux points proches le long du rayon. Cette variabilité est certainement liée à la taille des grains importante dans l'échantillon (une majorité des grains ont une taille supérieure à 100  $\mu\text{m}$ ). Les hétérogénéités de déformation sont détectables par la mesure de microdureté (taille moyenne de l'empreinte autour de 70  $\mu\text{m}$ ) qui devient ici une mesure quasi intragranulaire. La plupart des empreintes se retrouvent totalement à l'intérieur d'un grain ou alors sur un seul joint de grains.



**Figure 3-26.** Evolution de la dureté Vickers (HV0.3 /5) le long d'un rayon de l'éprouvette DECC déformée à 0.1 mm/s et comparaison avec les valeurs de dureté numérique converties des densités de dislocations à partir de loi HDD

Ce gradient d'énergie stockée lors de la déformation plastique peut également être caractérisé localement par une mesure des désorientations intragranulaires par EBSD. La figure 3-27 montre les cartographies de désorientations intragranulaires au centre, à mi-rayon et au bord de l'éprouvette DECC déformée ainsi que l'évolution de la valeur moyenne des désorientations intragranulaires (gradient local d'orientation en  $^{\circ}/\mu\text{m}$ ) le long du rayon. La préparation de surface par polissage induit des désorientations intragranulaires non représentatives de l'état de déformation du matériau. Sur la cartographie du bord de l'échantillon, on voit apparaître une rayure et des « spots » ayant de fortes désorientations intragranulaires provenant du polissage et qui augmentent artificiellement la valeur moyenne des désorientations dans une zone théoriquement peu déformée. Pour cette zone, on ne prendra pas en compte pour le calcul de la désorientation moyenne les points correspondant à cette rayure et à une partie des « spots ». La distribution sera seuillée à une valeur maximale de  $0,2^{\circ}/\mu\text{m}$ . On note clairement une augmentation de la désorientation moyenne du bord vers le centre. Les hétérogénéités de déformation responsables de la variabilité des mesures de microdureté sont également bien visibles. Le voisinage des joints de grains présente souvent des désorientations locales plus importantes que le centre des grains.

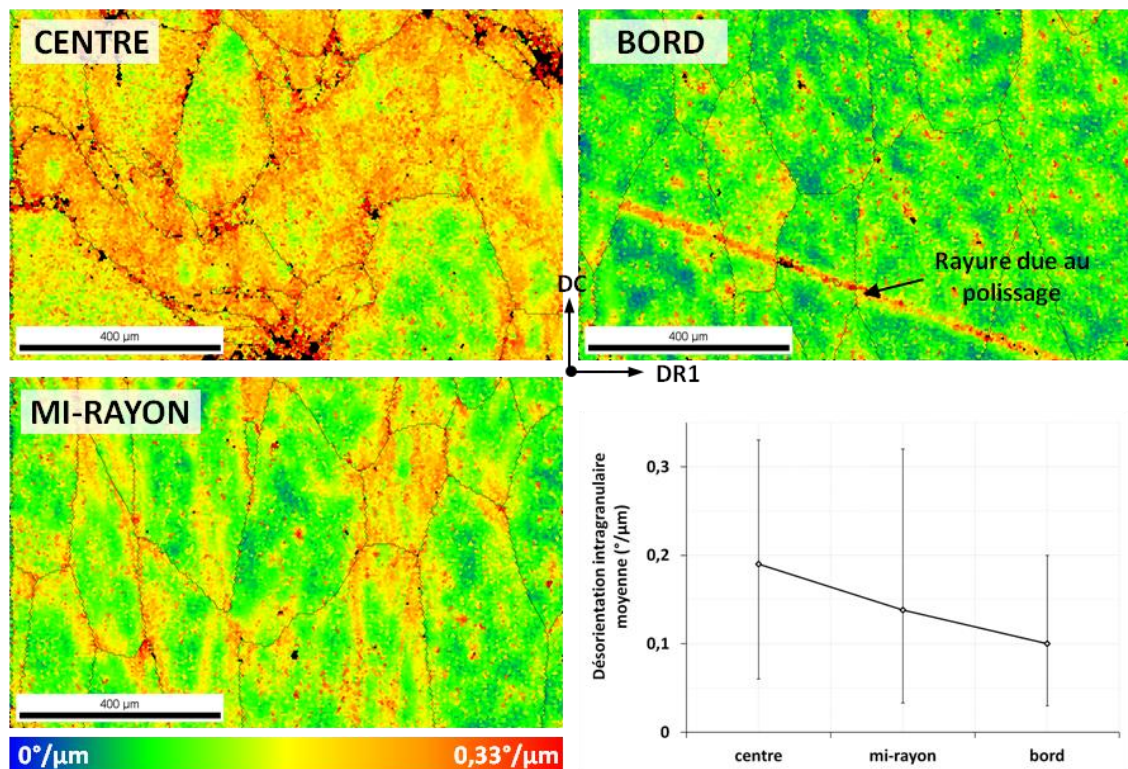


Figure 3-27. Cartographies des désorientations intragranulaires obtenues par EBSD et évolution de la désorientation intragranulaire moyenne le long d'un rayon

#### B. DETERMINATION DE LA COURBE DE DENSITE DE DISLOCATIONS CRITIQUE

Après avoir généré grâce à l'essai DECC un gradient de densité de dislocations, l'éprouvette est recuite. Elle est ensuite découpée dans le plan (DC, DR1) et ce plan est poli selon le protocole défini dans l'annexe A3 pour une caractérisation par EBSD. La microstructure est observée le long de l'axe DR1 du centre jusqu'au bord de l'échantillon. Pour identifier la densité de dislocations critique, on identifie le rayon à partir duquel des grains recristallisés sont observés. Une première approche consiste à observer la microstructure en imagerie d'électrons rétrodiffusés. L'éprouvette étant en tantale pur, le contraste observé est principalement dû à l'orientation cristallographique et les grains recristallisés sont assez facilement identifiables. Une analyse de la microstructure par EBSD permet de compléter et d'affiner cette première observation. Une fois le rayon « critique » de recristallisation déterminé, il suffit de le reporter sur la courbe de répartition de la densité de dislocations équivalente en fonction du rayon après déformation. On obtient ainsi une densité de dislocations critique pour le déclenchement de la recristallisation. Si on répète l'opération pour plusieurs températures de recuit, on construit ainsi la courbe de densité de dislocations critique en fonction de la température.

Pour établir cette courbe, trois éprouvettes déformées dans les mêmes conditions sont recuites à 900°C, 1000°C et 1050°C pendant 30 minutes avec une pente de chauffage d'environ 20°C/min. La figure 3-28 présente les microstructures observées en électrons rétrodiffusés pour les trois températures. Les limites de recristallisation sont indiquées par la barre rouge et le rayon de la zone recristallisée est également spécifié sur cette figure.



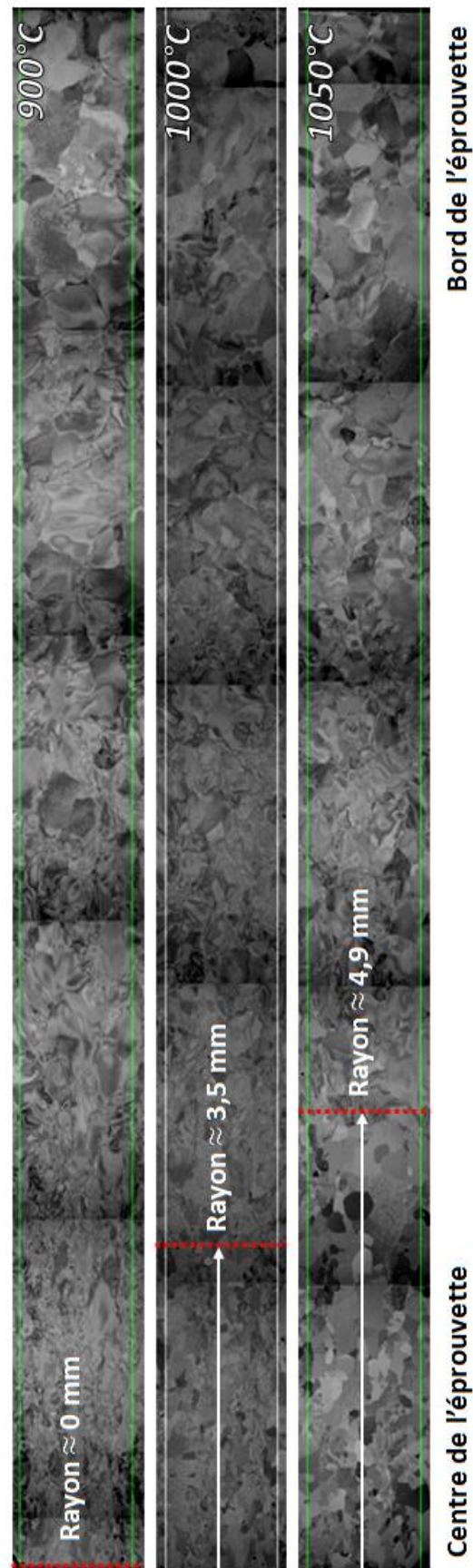


Figure 3-28. Microstructure des éprouvettes DECC traitées à  $900^{\circ}\text{C}$ ,  $1000^{\circ}\text{C}$  et  $1050^{\circ}\text{C}$  (imagerie BSE). La ligne pointillée rouge indique la limite de recristallisation avec la valeur du rayon correspondant.

Les rayons critiques de recristallisation sont donc :

- 0 mm à 900°C
- 3,2 mm à 1000°C
- 4,6 mm à 1050°C

A 900°C, il est compliqué de donner une valeur de densité de dislocations équivalente critique étant donné que l'on n'observe pas clairement de recristallisation dans l'éprouvette DECC. Cependant, en analysant la zone centrale par EBSD, on retrouve de petits grains recristallisés au niveau des joints de grains (figure 3-29). Il est donc raisonnable de penser que la densité de dislocations critique à 900°C est légèrement supérieure à 9,5 (valeur de la densité de dislocations au centre de l'éprouvette). La distribution des désorientations intragranulaires dans la zone centrale a un écart-type relatif de 0,25. Or, d'après la relation 3.3, la densité de dislocations est reliée linéairement à l'angle de désorientation. On peut donc estimer que cet écart-type serait le même pour les densités de dislocations. La densité de dislocations maximale dans cette zone serait d'environ 10,5, ce qui correspondrait également à la densité de dislocations équivalente critique à 900°C. On retrouve l'évolution de la densité de dislocations critique en fonction de la température sur la figure 3-30.

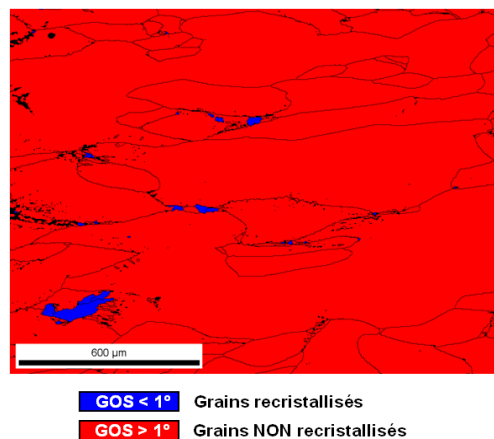


Figure 3-29. Présence de grains recristallisés dans la zone centrale de l'éprouvette traitée à 900°C

Les recuits pour déterminer cette courbe de densités de dislocations critique sont réalisés avec une pente de chauffage d'environ 20°C/min. Le temps passé au dessus de 600°C est donc assez important (entre 15 min et 22 min 30 s) durant lequel la restauration est active. Cela signifie que la densité de dislocations à partir de laquelle s'est déclenchée la recristallisation est inférieure à la densité de dislocations évaluée dans l'état déformé. Il est donc nécessaire de corriger la courbe obtenue en utilisant la loi de restauration établie pour le tantale dans (Houillon 2009) et ré-identifiée dans la partie 2 de ce document.



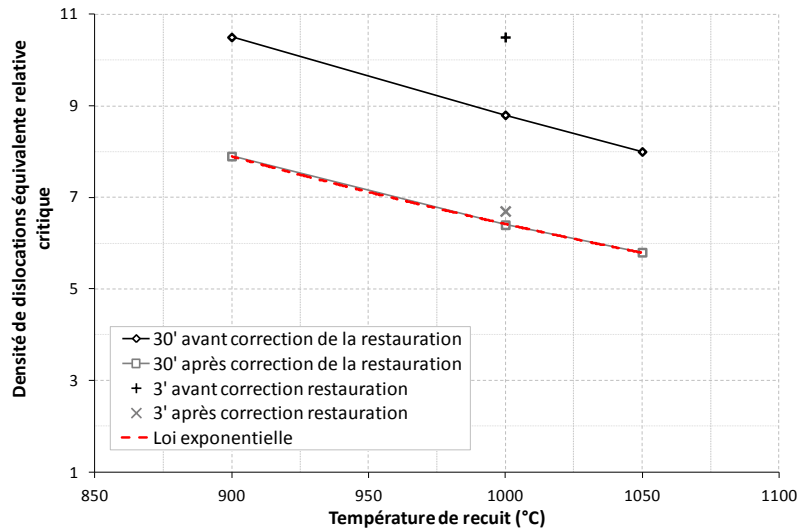


Figure 3-30. Courbe de densités de dislocations critique pour le tantale pour un recuit effectué à 20°C/min avant et après correction de la restauration

Ces courbes sont établies pour un temps de recuit de 30 min. Lorsque ce temps va diminuer, la densité de dislocations critique va augmenter. Les embryons ayant moins de temps pour atteindre les conditions critiques de croissance et devenir des germes, seuls les germes déjà présents dans la microstructure vont être activés. Un recuit d'une éprouvette DECC avec un temps de palier thermique court (3 min) montre qu'à 1000°C la zone centrale commence à peine à recrystalliser (figure 3-31), la densité de dislocations critique (avant correction de la restauration) est donc d'environ 10,5. Après correction de la restauration, on trouve une valeur de 6,7, légèrement supérieure à la valeur obtenue pour 30 minutes de traitement qui est de 6,2 (figure 3-30). A 1000°C, la densité de dislocations critique ne paraît pas varier beaucoup en fonction du temps de palier.

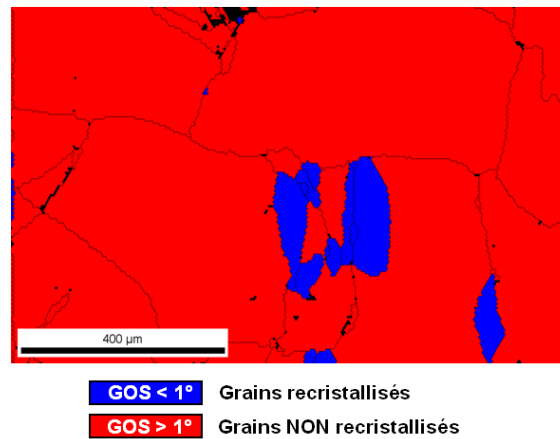


Figure 3-31. Début de recrystallisation dans la zone centrale d'une éprouvette DECC déformée à 0,1 mm/s et recuite à 1000°C pendant 3 min (pente de 20°C/min)

En vue d'une intégration de cette courbe de densité de dislocations critique pour le déclenchement de la recrystallisation dans le modèle, on peut identifier une loi simple de type exponentielle (forme de loi classique pour les phénomènes thermiquement activés),

$$\rho_{cr} = \rho_{cr,0} e^{-\beta T}$$

Equation 3.8

Avec  $T$  la température en Kelvin, les paramètres de la loi (3.8) ont pour valeurs :

$$\begin{aligned}\rho_{cr,0} &= 89,1 \\ \beta &= 20,7 \times 10^{-4} K^{-1}\end{aligned}$$

Cette loi est validée entre 900 °C et 1050°C. Cependant la forme de la loi étant assez classique, on la considérera extrapolable à des températures plus élevées. Lorsque la température est plus faible que 900°C, l'extrapolation est plus compliquée étant donné que la germination va devenir très peu probable (quasi nulle aux alentours de 600 °C) et que la loi utilisée ici ne représentera pas une augmentation très importante de la densité de dislocations critique.

#### 4. Cinétiques de recristallisation du tantale pur et croissance de grains

Une fois le seuil de déclenchement de la recristallisation déterminé, il est important de savoir comment progresse la fraction volumique de grains recristallisés au cours du temps et en fonction de la température. L'identification de cette fraction recristallisée dans la microstructure se faisant en règle générale à partir d'une observation 2D, la fraction recristallisée mesurée sera surfacique. La cinétique de recristallisation obtenue à partir de ces mesures est ensuite considérée comme identique à la cinétique 3D. Pour déterminer ces cinétiques, des éprouvettes seront recuites à l'aide d'un four Netzsch « haute vitesse » permettant d'atteindre des vitesses de chauffage très rapides (la vitesse moyenne atteinte lors des essais est d'environ 600 K.min<sup>-1</sup>). Le traitement se fait sous une légère surpression d'argon dans la chambre. La chambre du four est plusieurs fois successivement mise sous vide primaire et remplie d'argon (5 cycles) pour « nettoyer » le four de l'oxygène. Ce moyen de traitement permet une bonne maîtrise des conditions du traitement thermique, la mesure de température étant faite très proche de l'échantillon. A la fin du palier du traitement thermique, une valve est ouverte pour permettre une circulation d'argon dans la chambre afin d'accélérer le refroidissement de l'échantillon et ainsi éviter autant que possible toute évolution métallurgique. Deux exemples de courbes de températures pour des recuits à 1000°C et 1100°C sont montrés sur la figure 3-32.

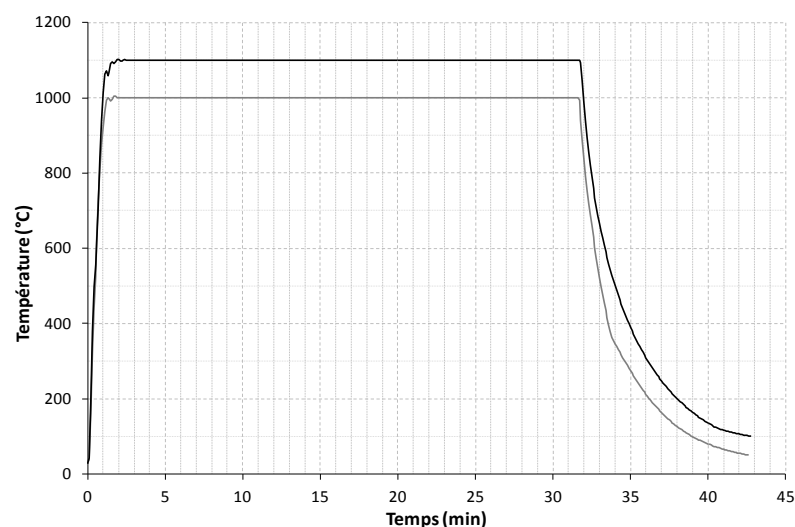


Figure 3-32. Courbes de température typiques des traitements réalisés avec le four Netzsch

Les échantillons sont obtenus par des essais de torsion (décrits en annexe A1) réalisés dans des conditions de déformation engendrant des microstructures différentes. Le tableau 3-3 donne les conditions de déformation ainsi que les densités de dislocations équivalentes maximales (en surface externe de l'éprouvette) en fin de déformation calculées à partir de la loi d'écrouissage (2.4) identifiée dans la partie 2.

**Tableau 3-3. Conditions de déformation en surface de la partie utile et densité de dislocations des microstructures initiales**

Déformation	0,64	1,28	3,5
Vitesse de déformation ( $s^{-1}$ )	0,5	0,5	0,05
Densité de dislocations équivalente relative	<b>6,2</b>	<b>6,7</b>	<b>9,5</b>

Les échantillons prélevés sont des demi-cylindres d'un diamètre de 6 mm et d'une hauteur d'environ 4 mm. Une fois traités, un méplat d'environ 2 mm de largeur est réalisé sur la partie cylindrique et sur toute la hauteur de l'échantillon. Sur ce méplat, la microstructure a subi une déformation de 0,95 à 1 fois la déformation maximale<sup>5</sup> pour une vitesse de déformation qui varie peu également (variation du même ordre que la déformation). La microstructure observée sur le méplat a donc subi une histoire thermomécanique quasi homogène. Le méplat est alors poli suivant le protocole décrit dans l'annexe A3 pour être observé par EBSD. Les fractions recristallisées sont déterminées à partir de la méthode du « Grain Orientation Spread » (seuil fixé à 1°). Les barres d'incertitude présentes sur les mesures de la fraction recristallisée traduisent les variations dues au choix du seuil de l'analyse GOS (entre 0,8° et 1,2° suivant la microstructure).

#### A. CINETIQUE DE RECRISTALLISATION DE REFERENCE A 1000°C

L'objectif de cette étude des cinétiques de recristallisation est d'évaluer l'effet des paramètres thermomécaniques comme la densité de dislocations équivalente initiale, la température et le temps de recuit ou encore la quantité de déformation. L'échantillon présentant une densité de dislocations équivalente relative de 6,2 a été traité à 1000°C pendant différentes durées de 2 min à 1 h. La cinétique de recristallisation établie servira de référence pour la suite de cette étude.

La figure 3-33.a montre l'évolution de la fraction recristallisée en fonction du temps pour cet échantillon de référence. On constate clairement que la fraction recristallisée (X) augmente avec le temps pour atteindre 50% au bout d'une heure. La tendance de cette courbe peut également nous faire penser que l'échantillon ne recristallisera jamais à 100% même pour des temps très longs. Lorsque l'on considère la courbe de densité de dislocations critique déterminée précédemment, la valeur critique à 1000°C pour le tantale est d'environ 6,4 pour 30 min de recuit. La densité de dislocations déterminée dans l'échantillon est donc très proche de cette valeur seuil. On peut alors suggérer qu'une partie seulement de la distribution de densité de dislocations se trouvait au dessus de la valeur critique (étant donné la dispersion expérimentale de la densité de dislocations). Pendant que ces zones recristallisent, l'énergie stockée dans le reste de la microstructure réduit par restauration et ainsi la force motrice pour le mouvement du front de recristallisation diminue. Ceci peut expliquer que la cinétique soit assez lente et que la fraction recristallisée n'atteigne jamais 100%.

<sup>5</sup> La déformation maximale se situe à la surface de la partie utile.

Au cours de la recristallisation, la taille moyenne des grains recristallisés atteint environ 32  $\mu\text{m}$  au bout de 2 min (figure 3-33.b). Lorsque le temps de recuit augmente, la taille de grains augmente lentement pour atteindre environ 36  $\mu\text{m}$  au bout d'une heure. La progression de la recristallisation est donc plus vraisemblablement due à une augmentation du nombre de grains recristallisés qu'à la croissance des premiers. Cette observation est compatible avec l'hypothèse de germination continue et le fait que les germes ont différents temps d'incubation. Une fois la densité de dislocations devenue inférieure à la densité de dislocations critique par restauration ou parce que les zones les plus déformées ont déjà entièrement recristallisés, la germination s'arrête. Cela peut expliquer aussi la saturation de la fraction recristallisée autour de 50 %.

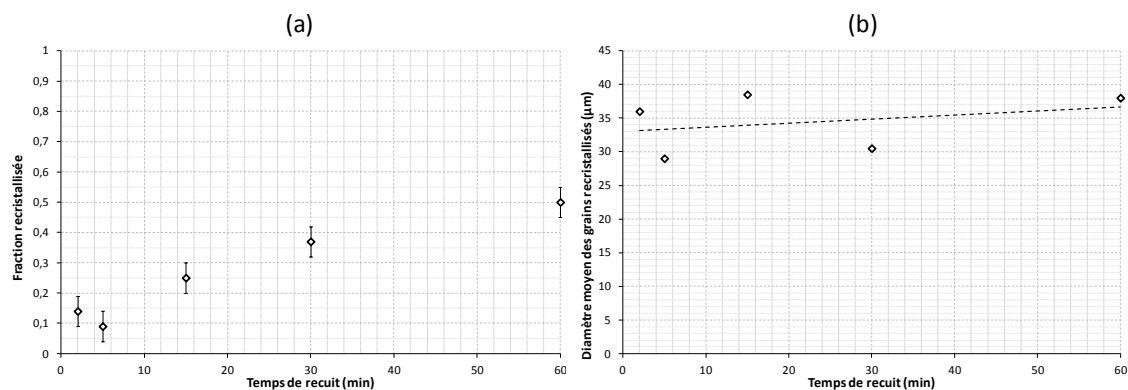
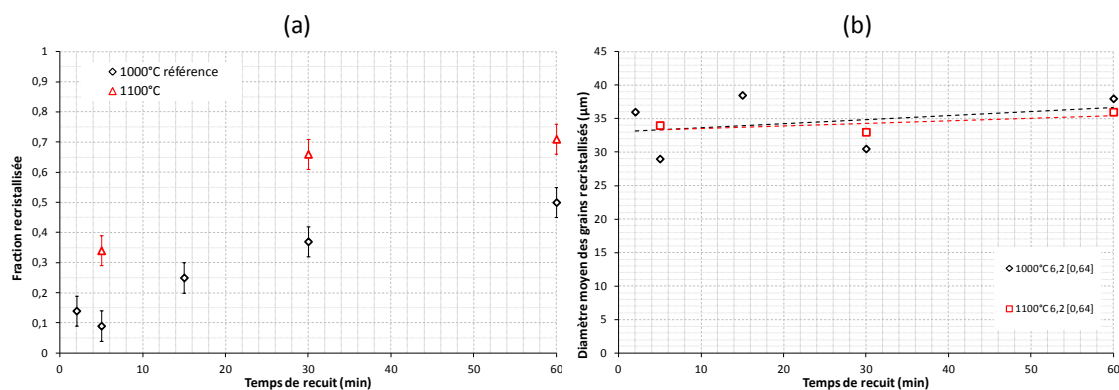


Figure 3-33. Cinétique de recristallisation de référence à 1000°C et taille moyenne des grains recristallisés (densité de dislocations équivalente relative 6,2)

#### B. INFLUENCE DE LA TEMPERATURE DE RECUIT

Lorsque pour ce même échantillon (densité de dislocations de 6,2), on augmente la température de recuit à 1100°C, le seuil critique de déclenchement de la recristallisation est abaissé. Selon l'équation 3.8, on estime cette valeur à 5,2. Cette fois-ci, l'échantillon se trouve significativement au-dessus de la valeur critique, et la cinétique de recristallisation est accélérée (figure 3-34.a). Cette accélération de la cinétique est également une conséquence de la mobilité des joints de grains qui augmente lorsque la température augmente. On remarque cependant que la fraction recristallisée semble tendre vers une valeur autour de 75 %. Ceci peut également s'expliquer par une diminution par restauration de la force motrice pour la migration des interfaces et, comme pour la cinétique à 1000°C, par le fait que la densité de dislocations devienne inférieure au seuil de déclenchement de la germination.

La taille de grains et son évolution sont, au contraire de la cinétique de recristallisation, très peu modifiées par une augmentation de la température (figure 3-34.b). On retrouve ici le fait que la germination est prépondérante sur les effets de mobilité de joints de grains dans la progression de la fraction recristallisée.



**Figure 3-34. Influence de la température sur la cinétique de recristallisation et sur la taille moyenne des grains recristallisés (densité de dislocations initiale 6,2)**

### C. INFLUENCE DE LA DENSITE DE DISLOCATIONS INITIALE

En comparaison de la cinétique de référence établie à 1000°C, une augmentation de la densité de dislocations de l'échantillon déformé accélère notablement la cinétique de recristallisation (figure 3-35.a). Dès 15 min de traitement, la microstructure est totalement recristallisée. Avec la méthode du GOS, la fraction recristallisée maximale pour cet échantillon est de 90%. En observant la microstructure (figure 3-36), on peut vérifier sur base d'un critère de forme que tous les grains ou presque sont recristallisés. Les grains considérés comme non recristallisés sont en fait des regroupements de grains recristallisés ayant une orientation cristallographique proche comme on peut le voir sur la figure 3-36 (zoom). Les interfaces qui se créent entre les grains sont désorientées de moins de 5° et donc peu mobiles (orientation pinning) mais ceci engendre un « Grain Orientation Spread » supérieur à 1,2°. Dans ce cas, les barres d'incertitudes sont définies autrement : la fraction recristallisée se situe entre la valeur déterminée et 1.

La taille moyenne des grains recristallisés est fortement diminuée par rapport à un échantillon moins déformé. On passe d'environ 32 μm en début de recristallisation pour l'échantillon de référence à 11 μm en fin de recristallisation pour l'échantillon ayant initialement une densité de dislocations équivalente de 9,5. Cette différence de taille de grains résulte d'une plus forte densité des germes activés lors du traitement thermique. La microstructure étant entièrement recristallisée dès 15 min, les grains entrent dans le régime de croissance de grains pour les traitements plus longs. Même après 3 h de traitement à 1000°C, la taille de grains moyenne n'a cependant pas évolué de manière significative et atteint seulement 13 μm. La vitesse moyenne de migration des joints de grains est alors estimée à  $1 \times 10^{-4}$  μm/s. Cette faible vitesse de croissance de grains à 1000°C pourrait être liée à la proportion de joints de grains faiblement désorientés (entre 5° et 15°) (figure 3-37.a) qui ont une mobilité inférieure à des interfaces plus fortement désorientées. Il apparaît donc compliqué d'estimer une mobilité moyenne dans cette situation.

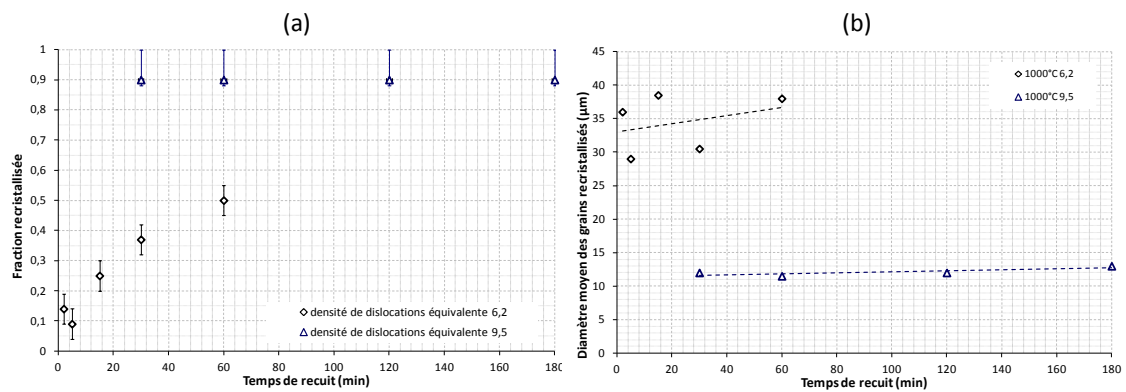


Figure 3-35. Influence de la densité de dislocations équivalente initiale sur la cinétique de recrystallisation et sur la taille moyenne des grains recrystallisés à 1000°C

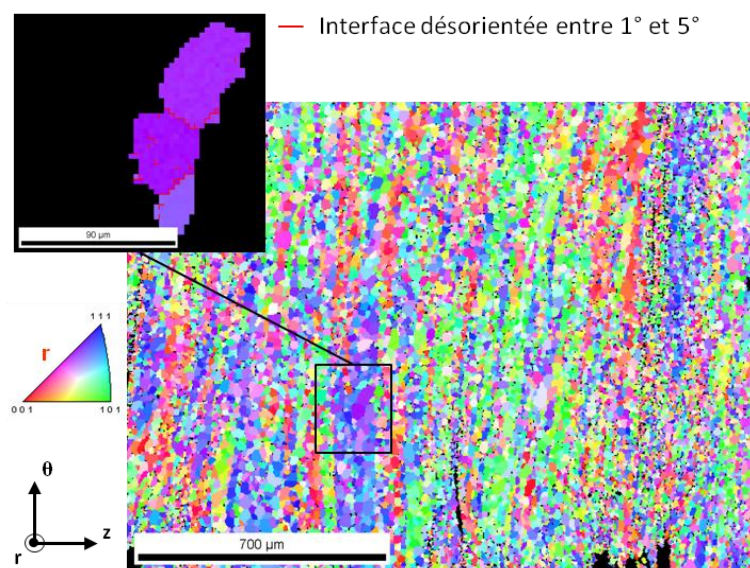


Figure 3-36. Microstructure de l'échantillon ayant la densité de dislocations initiale la plus élevée (9,5) et recuit à 1000°C pendant 15 min (cartographie d'orientation obtenue par EBSD)

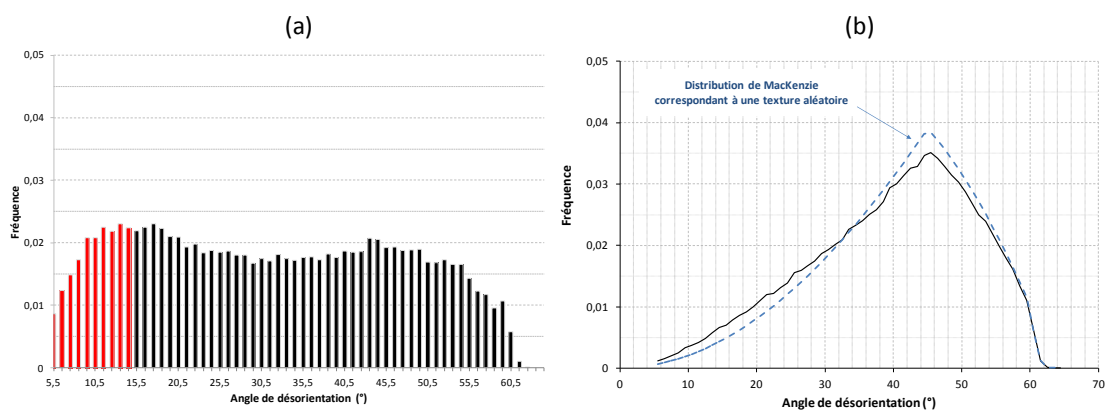


Figure 3-37. Distribution des angles de désorientations entre deux pixels de la cartographie de l'échantillon recrystallisé (densité de dislocations équivalente de 9,5)

(a) uniquement au niveau des joints de grains

(b) entre deux pixels pris aléatoirement dans la cartographie

## D. EFFET DE LA QUANTITE DE DEFORMATION

Deux des trois échantillons ont été déformés dans les mêmes conditions de vitesse de déformation mais à deux niveaux de déformation (0,64 et 1,28), menant à des densités de dislocations équivalentes proches, respectivement 6,2 et 6,7. Cette faible différence provient du fait que la contrainte tend à saturer lorsque la déformation augmente. Malgré cela, on observe une accélération très nette de la cinétique de recristallisation pour l'échantillon déformé à 1,28 (figure 3-38.a). La principale différence entre ces deux échantillons est l'augmentation des sites potentiels de germination par la formation de la sous-structure au cours de la déformation. Dans les microstructures déformées, on observe un élargissement très clair de la distribution des désorientations intragranulaires lorsque la déformation augmente (figure 3-39) alors que le maximum ne se déplace pas beaucoup. Cette observation peut être le signe de la création de parois de dislocations générant des désorientations intragranulaires significatives et traduisant la formation de cellules de dislocations comme nous avons pu l'évoquer dans la partie 2. La description de la microstructure à une seule densité de dislocations équivalente montre ici ses limites. Vu que l'on s'appuie sur la contrainte pour en déduire la densité de dislocations équivalente, lorsque la déformation augmente, le modèle tend à faire saturer la densité de dislocations. Cependant, la sous-structure de dislocations se forme, devient de mieux en mieux définie et va donc influencer de plus en plus la recristallisation. Ce phénomène n'est donc pas pris en compte. On note également que pour cette nouvelle cinétique, la fraction recristallisée atteint 80% de fraction recristallisée dès 15 min de traitement pour ensuite ne plus évoluer de manière significative.

La taille de grains moyenne de cet échantillon plus déformé est inférieure à celle de l'échantillon de référence (figure 3-38.b.). Pour un temps équivalent de 15 min, on passe d'environ 35  $\mu\text{m}$  à 25  $\mu\text{m}$ . La structure en cellules formée au cours de la déformation a augmenté légèrement la densité de germes, la taille de grains moyenne est donc logiquement inférieure.

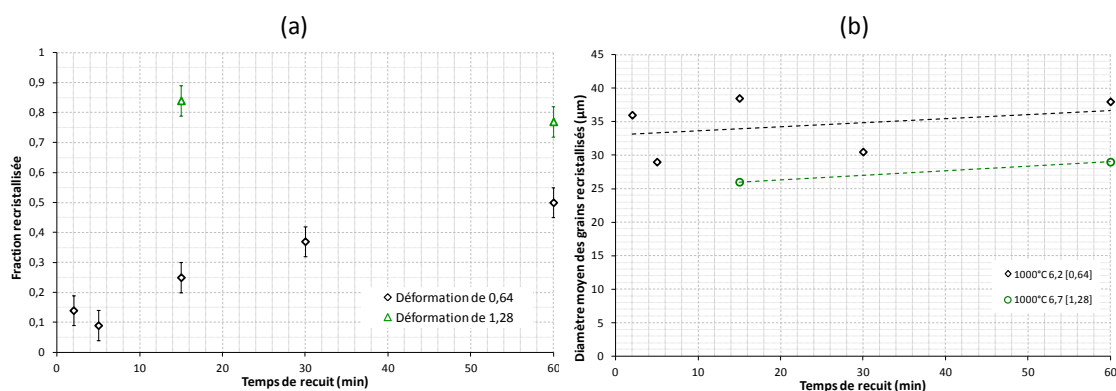


Figure 3-38. Influence de la quantité de déformation à niveau de densité de dislocations équivalent sur la cinétique de recristallisation et sur la taille moyenne des grains recristallisés à 1000°C



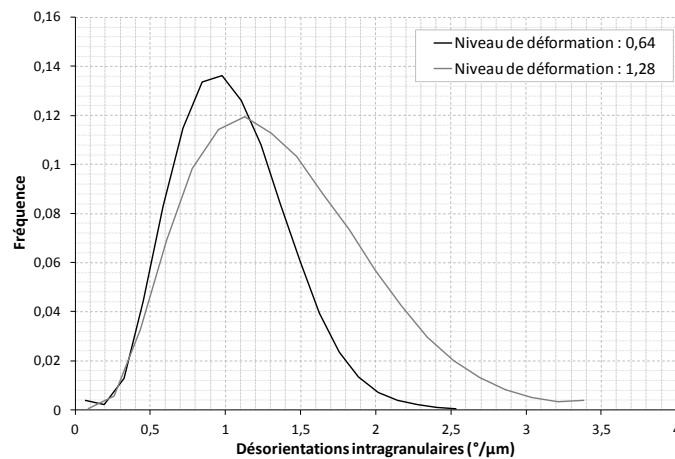


Figure 3-39. Distributions des désorientations intragranulaires dans les microstructures déformées à 0,64 et 1,28.

On peut donc retenir que :

- La courbe de densité de dislocations critique prédit bien le déclenchement de la recristallisation.
- Une augmentation de la température de 1000°C à 1100°C accélère la cinétique sans modifier la taille moyenne des grains recristallisés et avec un même type d'évolution au cours du temps.
- Une augmentation significative de la densité de dislocations équivalente de 6,2 à 9,5 accélère énormément la cinétique de recristallisation. La taille de grains est fortement diminuée à cause de l'augmentation de la densité de germes.
- Une augmentation de la quantité de déformation (de 0,64 à 1,28) accélère fortement la cinétique même si les densités de dislocations équivalentes dans les échantillons déformés sont proches. L'augmentation de la déformation entraîne la formation d'une sous-structure en cellules qui facilite la germination. La taille moyenne des grains recristallisés est, du coup, légèrement inférieure.

En revanche, la croissance de grains après recristallisation n'a pas réellement pu être observée. A 1000°C, la croissance des grains est très lente. On observe une augmentation de 2 μm de la taille de grains moyenne en 2 h de traitement. Cette vitesse faible de migration des joints de grains peut être liée à la quantité non négligeable de joints de grains faiblement désorientés (5° à 15°) dans la microstructure. Une identification de la mobilité moyenne des joints de grains paraît difficile à partir de ces données.



## SYNTHESE

Dans cette partie, nous avons abordé les aspects majeurs des évolutions microstructurales du tantale au cours d'un traitement thermique. Nous nous sommes basés à la fois sur une étude bibliographique et sur une caractérisation expérimentale de ces phénomènes afin d'en extraire des paramètres et des lois nécessaires à la modélisation qui va suivre.

Nous avons pu voir que la restauration dans le tantale est un phénomène qu'il est difficile de négliger. La restauration est active dès 600°C et il est donc très important de prendre en compte la vitesse de chauffage lorsque l'on souhaite décrire la compétition entre restauration et recristallisation. En raison de la modification de la loi HDD, les paramètres de la loi de restauration ont été réidentifiés pour permettre de prendre en compte ce phénomène par la suite.

Restauration	$\frac{d\rho}{dt} = -\lambda(\rho - \rho_{inf})^2 e^{-\frac{Q_r}{kT}}$	$\lambda = 0,78$ $\rho_{inf} = 4,1$ $Q_r = 1,29 \times 10^{19} \text{ J/at}$
--------------	--	--

La recristallisation et la croissance de grains ont été directement observées par une méthode originale de traitement thermique *in situ*. Cette technique permet d'observer localement les mécanismes responsables de la régénération de la microstructure. Une étude approfondie de la technique a permis de la valider et de montrer que la surface libre n'influait pas la migration des joints de grains. Une quantification de la mobilité moyenne des joints de grains est donc possible et on estime une valeur à 750°C de  $1 \times 10^{-13} \text{ m}^4 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ . Cette estimation est proche de la valeur de  $7 \times 10^{-13} \text{ m}^4 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  calculée à partir des paramètres physiques du tantale issus de la littérature.

Type de germination	Continue Au niveau des joints de grains	
Mobilité des joints de grains	$m = m_0 e^{-\frac{Q_m}{RT}}$	$m_0 = 1,07 \times 10^{-4} \text{ m}^4 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ $Q_m = 180 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$

La recristallisation dans le tantale se déclenche à partir de 800°C pour des échantillons déformés à des niveaux de déformation d'environ 5. Cette variable mécanique n'étant pas suffisante pour décrire la microstructure, nous avons choisi de déterminer une densité de dislocations équivalente critique pour le déclenchement de la recristallisation. Un essai mécanique a ensuite été dimensionné à partir d'une géométrie existante afin de générer un gradient de densité de dislocations. Ces éprouvettes déformées sont par la suite recuites à différentes températures pour estimer une densité de dislocations équivalente critique en fonction de la température. Les valeurs critiques observées sont corrigées par la loi de restauration pour prendre en compte la pente de chauffage. On obtient ainsi une courbe de déclenchement de la recristallisation thermodépendante avec comme variable la densité de dislocations équivalente, établie pour une durée de traitement de 30 min. Même si cette courbe est dépendante du temps de palier (un palier plus long laisse le temps à certains germes de se former), une faible différence de densité de dislocations critique a été observée avec un traitement réalisé à 1000°C pendant 3 min (avec la même vitesse de chauffage).

Loi de déclenchement de la recristallisation	$\rho_{cr} = \rho_{cr,0} e^{-\beta T}$	$\rho_{cr,0} = 89,1$ $\beta = 20,7 \times 10^{-4} K^{-1}$
--	--	--

Enfin, connaissant le déclenchement de la recristallisation, nous avons cherché à déterminer l'évolution de la fraction recristallisée au cours du temps, aspect manquant particulièrement dans la littérature. Plutôt que d'avoir un catalogue de cinétiques dans beaucoup de conditions différentes, cette étude s'est portée principalement sur l'évaluation de l'effet des paramètres thermomécaniques sur ces cinétiques. La température et l'augmentation de la densité de dislocations ont pour effet d'accélérer les cinétiques. Nous avons également pu constater que la cinétique de recristallisation et la microstructure recristallisée dépendaient énormément de la microstructure issue de la déformation :

- Les hétérogénéités de déformation induisent des hétérogénéités dans la microstructure de recuit.
- Les orientations cristallographiques les plus stables recristallisent difficilement.
- Une augmentation de la quantité de déformation (de 0,64 à 1,28) accélère fortement la cinétique même si les densités de dislocations équivalentes dans les échantillons déformés sont proches. L'augmentation de la déformation entraîne la formation d'une sous-structure en cellules qui facilite la germination. La taille moyenne des grains recristallisés est donc légèrement inférieure.

La germination apparaît comme un problème central dans le phénomène de recristallisation du tantale. En effet, les tailles de grains recristallisés atteignent très vite une valeur quasi stable alors que la fraction recristallisée évolue toujours. La progression de la recristallisation serait alors plutôt due à l'apparition de nouveaux grains qu'à la croissance de grains dans la matrice déformée. L'effet de l'augmentation du niveau de déformation sur le comportement en recristallisation est encore une autre preuve de l'effet de la germination sur la cinétique de recristallisation. Définir une loi de germination appropriée apparaît comme très important pour modéliser la recristallisation dans le tantale.

A l'issue de la phase de recristallisation, nous n'avons pas observé clairement de croissance de grains à 1000°C. Cependant, dans la littérature, la croissance est observée dans des expériences réalisées à 1100°C. De plus, nous avons également pu constater à partir de ces données, que la cinétique de croissance de grains dépendait significativement de la distribution de taille de grains en fin de recristallisation.



## **QUATRIEME PARTIE.**

### **Modélisation des évolutions microstructurales du tantale au cours d'un traitement thermique**

## INTRODUCTION

---

Un des deux objectifs fixés pour cette thèse est de fournir un modèle capable de simuler un traitement thermique pour prédire la microstructure recuite à partir d'une microstructure initiale. Nous allons appliquer la modélisation en champ moyen décrite dans la partie 1 pour prédire les microstructures obtenues après traitements thermiques. Les résultats des simulations seront comparés avec les données expérimentales obtenues en recristallisation dans la troisième partie de ce manuscrit, afin de valider les lois utilisées et d'identifier les paramètres du modèle.

Dans le modèle, nous utiliserons le plus possible les données déterminées expérimentalement dans les parties précédentes, notamment pour la densité de dislocations du matériau recristallisé (partie 2,  $\rho_0 = 3,5 \times 10^{13} m^{-2}$ ), la loi de restauration (partie 3 section II.1, équation 1.19) et la densité de dislocations critique (partie 3, section II.3). Une attention particulière sera portée sur la description des microstructures initiales. A partir de ces microstructures déformées en torsion, nous allons simuler les traitements thermiques réalisés à 1000°C et 1100°C pour tenter de prédire les microstructures obtenues expérimentalement après recuit.

### I. DESCRIPTION DES MICROSTRUCTURES INITIALES

---

La première étape consiste à bien décrire les microstructures initiales des traitements thermiques selon le modèle choisi. On rappelle ici que la microstructure représentative est décrite par une distribution de densités de dislocations et une distribution de tailles de grains. Les grains sont considérés sphériques et donc tridimensionnels. Le modèle est alimenté par une taille de grains moyenne  $\bar{d}_{3D}$  et une densité de dislocations moyenne  $\bar{\rho}$ , ainsi que par la largeur des distributions, déterminées respectivement par les paramètres  $f_g$  et  $f_d$ . Dans la suite, nous distinguerons les microstructures initiales des traitements de croissance de grains, de celles des traitements thermiques de recristallisation.

#### 1. *Microstructure initiale pour la croissance de grains*

La microstructure initiale pour la croissance de grains a été obtenue en réalisant un traitement thermique à 1000°C sur une éprouvette déformée en torsion ( $\bar{\epsilon} = 3,5$ ,  $\dot{\epsilon} = 0,05 s^{-1}$ ). On obtient alors une microstructure complètement recristallisée avec des grains équiaxes (figure 4-1.a) ayant une taille moyenne en nombre en deux dimensions  $\bar{d}_{2D} = 12 \mu m$ . La distribution de taille de grains de cette microstructure est présentée sur la figure 4-1.b et à laquelle correspond une valeur  $f_g \approx 0,4$ . La description de la microstructure pour modéliser la recristallisation nécessite des données en trois dimensions. Pour transformer la valeur de la taille de grains moyenne 2D en taille 3D, nous avons appliqué la méthode de Saltykov (Saltykov 1958) sur la distribution des diamètres de cercles équivalents. Par cette méthode, la taille de grains moyenne 3D en nombre est égale à  $\bar{d}_{3D} = 9,8 \mu m$ . Le facteur de conversion entre les tailles moyennes 2D et 3D est donc égal à 0,82 pour cette microstructure. On note que ce facteur est ici inférieur à 1 mais que sa valeur est susceptible d'être modifiée en fonction de la microstructure que l'on considère (forme des grains et distribution de taille). Par

cette transformation en trois dimensions, la distribution devient non symétrique par rapport à la moyenne et on ne peut plus décrire strictement la largeur de distribution avec une quantité unique (partie 1, équations 1.5 et 1.6). Il faudrait un nombre fixant la valeur minimale et un autre la valeur maximale. Ici, on considérera néanmoins la largeur de distribution identique à celle obtenue en 2D, qui est un compromis entre la prise en compte des gros grains et l'ajout de petits grains dans la distribution.

La densité de dislocations de cette microstructure est celle déterminée pour le matériau recristallisé  $\rho_0 = 3,5 \times 10^{13} m^{-2}$ . Dans ce cas, la microstructure est décrite par cette seule valeur de densité de dislocations et non par une distribution.

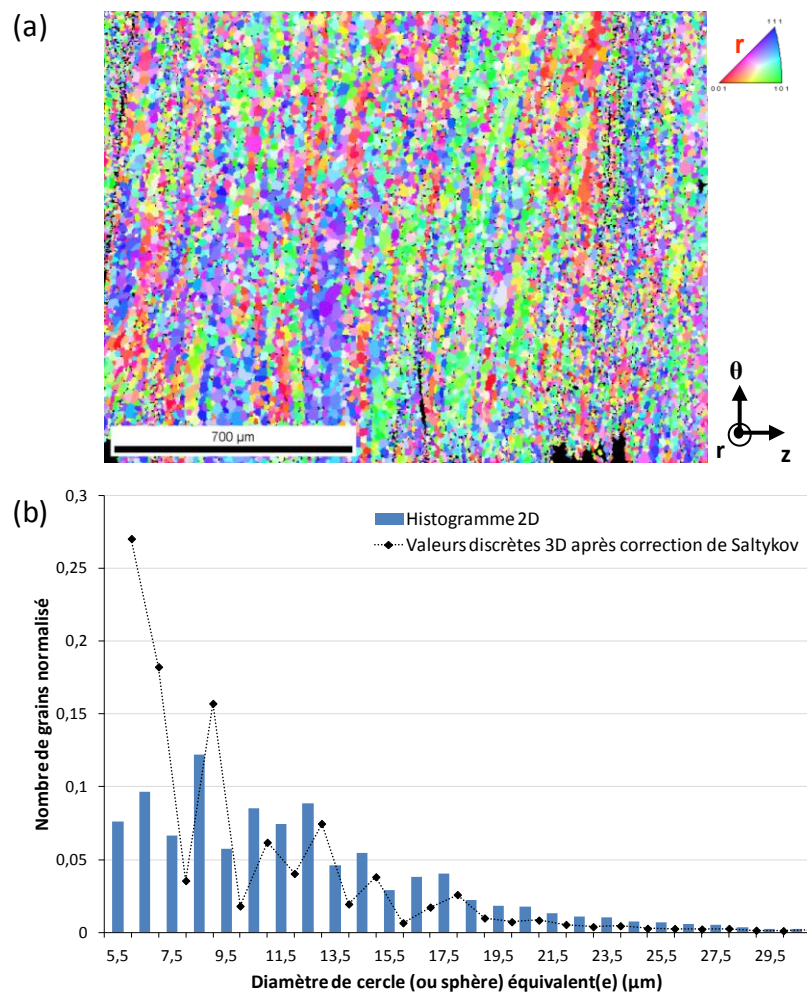


Figure 4-1. Microstructure initiale pour les traitements thermiques de croissance de grains

(a) cartographie d'orientations obtenues par EBSD

(b) distributions de tailles de grains en 2D et en 3D après correction de Saltykov

**Remarque**

La définition d'une taille de grains requiert de fixer un angle de désorientation minimal pour définir un joint de grains. Dans notre cas nous avons choisi ce seuil à  $5^\circ$  pour bien décrire la microstructure que l'on observe effectivement. Des grains que l'on observe clairement sur une cartographie peuvent ne pas être détectés si le seuil est fixé à  $15^\circ$  (figure 4-2.a).

Au regard de la mobilité des joints de grains notamment, cette valeur de  $5^\circ$  apparaît basse, les joints de grains étant généralement considérés très mobiles à partir d'un angle de  $15^\circ$  de désorientation. Cependant, la quantité de joints de grains ayant un angle de désorientation inférieur à  $15^\circ$  est plutôt faible par rapport à la quantité totale de joints de grains (figure 4-2.b). Le choix d'un angle de  $5^\circ$  ne devrait pas donc avoir un impact significatif sur les évolutions prédites de la microstructure au cours des traitements thermiques.

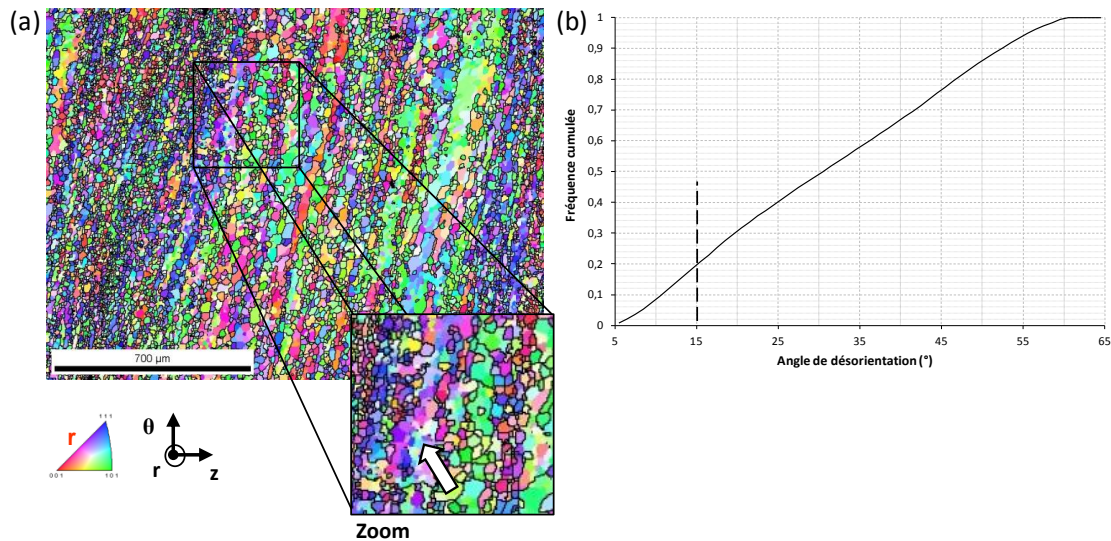


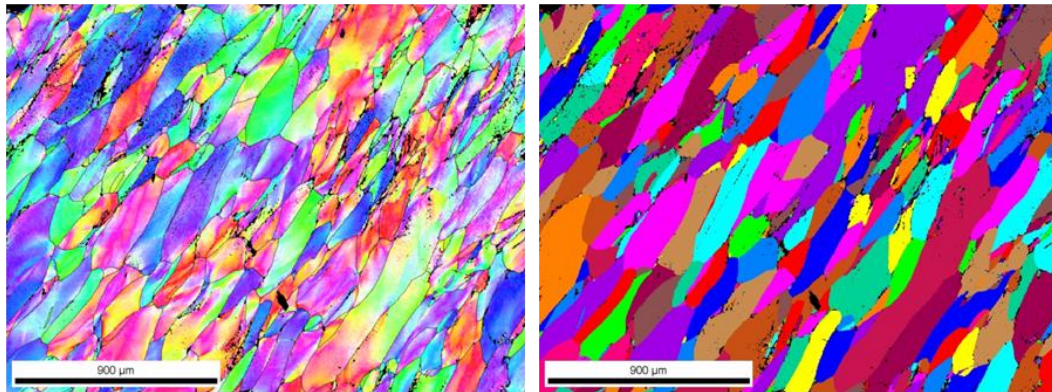
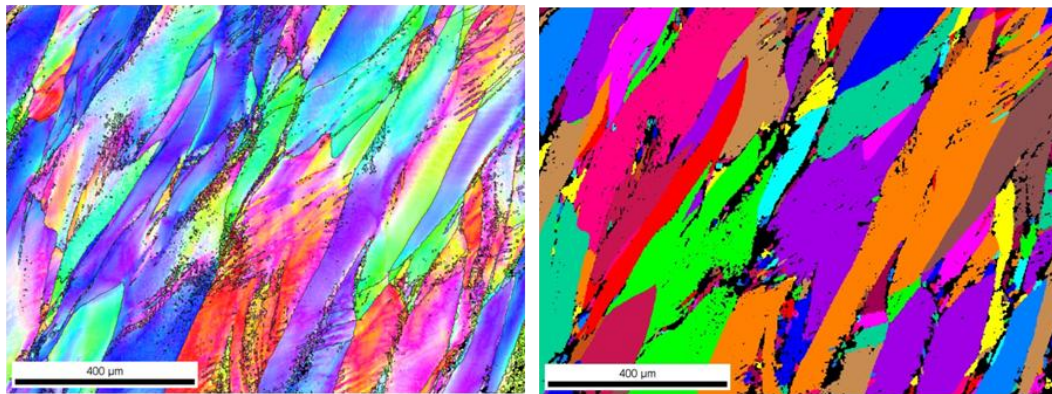
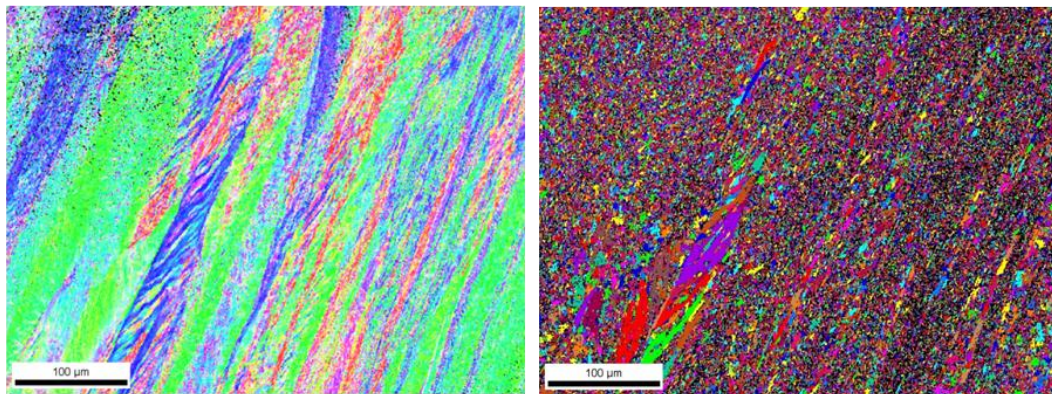
Figure 4-2. (a) Microstructure recristallisée avec un angle de désorientation seuil de détection des joints de grains à  $15^\circ$

(b) Diagramme des fréquences cumulées des désorientations des joints de grains dans la même microstructure

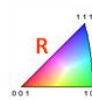
## 2. Microstructures initiales pour la recristallisation

Comme nous avons pu le voir dans la partie 3 section II.4, trois types de microstructures ont été produites à partir d'essais de torsion pour établir des cinétiques de recristallisation. Ces trois microstructures ont été choisies pour leurs caractéristiques permettant de tester le modèle, et notamment l'influence de la description de la microstructure initiale. Les trois microstructures déformées ont été analysées par EBSD et sont présentées sur la figure 4-3. Ces microstructures sont également évoquées dans la partie 2, section III. La microstructure 1 a été choisie car elle se décrit de manière assez pertinente par des distributions de densités de dislocations et de tailles de grains telles que nécessaires dans le modèle en champ moyen utilisé. En effet, la morphologie des grains est assez proche de formes équiaxes et la distribution de densité de dislocations intragranulaires est approximable par une densité de dislocations moyenne. Les microstructures 2 et 3 sont plus éloignées du modèle de description de la microstructure et seront donc un bon test pour connaître les capacités du modèle en champ moyen à retranscrire les évolutions microstructurales de telles microstructures. La microstructure 3 est très fragmentée alors que la microstructure 2 est une microstructure intermédiaire, avec des grains allongés et des zones fragmentées.



**Microstructure 1****Microstructure 2****Microstructure 3**

Cartographies  
d'orientations



$\theta$   
R

Z Axe de torsion

Une seule couleur  
par grain

**Figure 4-3. Microstructures initiales pour les traitements de recristallisation (à gauche, cartographies d'orientations et, à droite, cartographies dans lesquelles chaque grain a une seule couleur)**

#### A. DISTRIBUTION DE DENSITES DE DISLOCATIONS

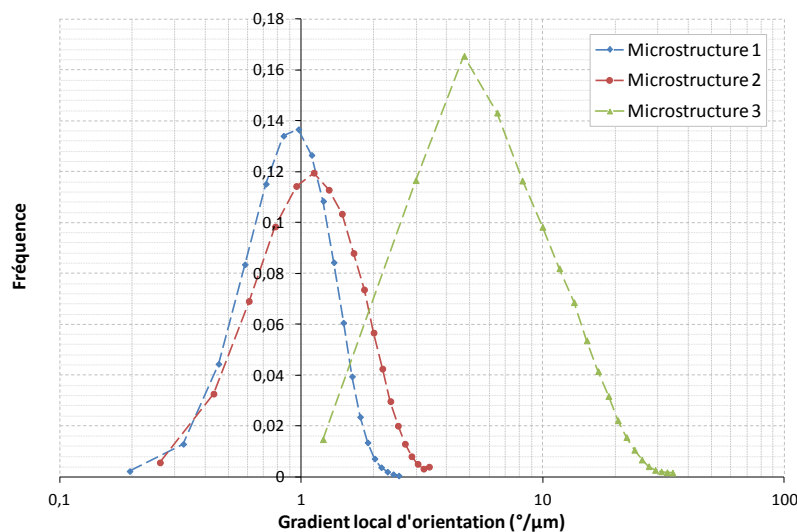
La densité de dislocations équivalente relative moyenne a été déterminée dans la troisième partie à partir de la loi de comportement basée sur la densité de dislocations. Le tableau 4-1 résume les valeurs absolues obtenues pour chacune des microstructures. La figure 4-4 montre les désorientations intragranulaires mesurées par EBSD dans chacune des microstructures, sous la forme de distributions du gradient local d'orientation. On constate que, lorsque



la déformation augmente, les gradients d'orientation locaux augmentent et semblent suivre une loi de type log-normale. Le paramètre de largeur de ces distributions  $f_d$  est d'en moyenne 0,2. Interpréter le sens physique de ces distributions est néanmoins délicat, la distribution des gradients locaux d'orientation dépendant de nombreux paramètres de la mesure EBSD (résolution spatiale et angulaire, pas de mesure, préparation de la surface, ...).

**Tableau 4-1. Densité de dislocations équivalente moyenne pour les trois microstructures issues des essais de torsion**

	Microstructure 1	Microstructure 2	Microstructure 3
Déformation	0,64	1,28	3,5
Vitesse de déformation ( $s^{-1}$ )	0,5	0,5	0,05
Densité de dislocations relative	6,2	6,7	9,5
<b>Densité de dislocations absolue (<math>m^{-2}</math>)</b>	<b><math>2,17 \times 10^{14}</math></b>	<b><math>2,35 \times 10^{14}</math></b>	<b><math>3,33 \times 10^{14}</math></b>
$f_d$	0,2	0,2	0,2



**Figure 4-4. Désorientations intragranulaires dans chacune des microstructures 1, 2 et 3**

La densité de dislocations géométriquement nécessaires étant liée de façon linéaire aux désorientations intragranulaires (équation 3.3), on supposera que la distribution des densités locales de dislocations suit également une loi log-normale avec un paramètre de largeur de distribution  $f_d$  de 0,2. Cette distribution locale sera ensuite considérée comme la distribution des densités de dislocations à l'échelle granulaire.

#### B. DISTRIBUTION DE TAILLES DE GRAINS

Le modèle de recristallisation se base sur l'hypothèse que les grains sont des sphères. Dans le cas présent d'une déformation à froid, la forme des grains déformés peut être très éloignée d'une sphère. On voit d'ailleurs sur la figure 4-3 que les grains sont nettement allongés et ont plutôt une forme d'ellipsoïde.

A partir des données EBSD, on accède à la surface de chacun des grains considérés dans la microstructure. Cette donnée brute est ensuite convertie en un diamètre de cercle équivalent (i-e de même surface) pour calculer ensuite un diamètre moyen des grains, en considérant donc ceux-ci comme des cercles,  $\bar{d}_{2D,c}$ . Le tableau 4-2 regroupe ces tailles de grains équivalentes pour les trois microstructures. Cette méthode définit la taille de grains sur la base

d'une hypothèse de forme des grains qui est assez éloignée de la morphologie réelle, et qui, de plus, est relative à des coupes en 2D de la microstructure.

Comme pour la microstructure présentée précédemment dans la section I.1 de cette partie, on peut, en première approche, transformer la distribution des diamètres de cercles équivalents en 2D en une distribution de diamètres en 3D par la méthode de Saltykov. Les résultats (taille de grains moyenne  $\bar{d}_{3D,c}$ , facteur de conversion 2D/3D et largeur des distributions) de cette transformation sont présentés dans le tableau 4-2. Cette méthode est contestable par le fait que les grains ne sont pas des sphères et que la statistique de la mesure EBSD (nombre de grains) ne permette pas d'être dans les conditions idéales pour appliquer la méthode de Saltykov.

Dans le cas présent, pour décrire de la manière la mieux adaptée la microstructure initiale, il faut se rappeler l'importance des joints de grains pour la germination de la recristallisation. Ainsi, la taille de grains qui serait la plus pertinente serait celle permettant d'introduire dans le modèle de recristallisation la bonne quantité de joints de grains par unité de volume. Nous avons par conséquent choisi de déterminer une taille de grains sphériques équivalente à la densité de joints de grains mesurée.

Nous allons réaliser cette analyse directement en 3D, ce qui suppose de faire quelques hypothèses :

- Les grains sont approximés par des ellipsoïdes de révolution tels que la longueur de l'axe perpendiculaire au plan de mesure soit égale à la longueur du petit axe  $a$  de l'ellipse dans le plan de mesure,
- Tous les grains sont coupés à l'équateur (hypothèse forte),
- Le facteur de forme  $\bar{f}$  (*petit axe/grand axe*) est identique pour chaque grain.

A partir de la mesure EBSD, on accède à la distribution de ces petits axes  $a_i$  dans la microstructure et au facteur de forme moyen  $\bar{f}$  défini comme le rapport entre le petit axe et le grand axe de l'ellipse. On peut ainsi calculer la valeur  $(a_i/\bar{f})$  du grand axe des ellipses pour chaque catégorie de la distribution des petits axes.

Pour chaque ellipsoïde de petit axe  $a_i$ , on calcule sa surface  $S_i$  et son volume  $V_i$  par :

$$S_i = 2\pi a_i^2 \left( 1 + \frac{\arcsin(1 - \bar{f}^2)}{(1 - \bar{f}^2)\bar{f}} \right) \quad \text{Equation 4.1}$$

$$V_i = \frac{4}{3}\pi \frac{a_i^3}{\bar{f}} \quad \text{Equation 4.2}$$

La densité de joints de grains  $L_{GB,i}$  pour une ellipse  $i$  est ensuite calculée à partir du rapport entre la surface et le volume (avec un facteur 1/2 puisque chaque joint de grains appartient à deux grains) :

$$L_{GB,i} = \frac{S_i}{2V_i} \quad \text{Equation 4.3}$$

On obtient ainsi une distribution des densités de joints de grains dans la microstructure (avec une valeur moyenne en nombre  $\bar{L}_{GB}$ ), distribution que l'on souhaite traduire en

distribution de diamètres de sphères équivalentes (au sens de la densité de joints de grains). En considérant l'équation 4.3 et en imposant que les grains sont maintenant des sphères, le diamètre équivalent pour chaque grain  $i$  est donné par :

$$D_{eq,i} = \frac{3}{L_{GB,i}} \quad \text{Equation 4.4}$$

De cette distribution, on calcule la valeur moyenne (en nombre) du diamètre équivalent  $\bar{D}_{eq}$  (au sens de la densité de joints de grains). A partir des valeurs minimale et maximale de la distribution des diamètres équivalents, on estime le paramètre de largeur de la distribution des tailles de grains équivalentes. Dans le cas d'une distribution nécessitant deux paramètres différents pour représenter les valeurs min et max à partir de la moyenne, on choisit ce paramètre comme compromis permettant de représenter au mieux la microstructure. Les tailles de grains obtenues selon les trois définitions décrites ci-dessus pour les microstructures 1,2 et 3 sont récapitulées dans le tableau 4-2.

**Tableau 4-2. Caractéristiques des distributions de taille de grains pour les trois microstructures suivant le mode de représentation des grains dans une microstructure déformée à froid**

	Microstructure 1	Microstructure 2	Microstructure 3
$\bar{d}_{2D,c} (\mu\text{m})$	<b>117</b>	<b>91</b>	<b>1,7</b>
$f_{g,2D,c}$	0,35	0,4	0,1
$\bar{d}_{3D,c} (\mu\text{m})$	<b>76</b>	<b>60</b>	<b>2,1</b>
$f_{g,3D,c}$	0,3	0,32	0,4
Facteur de conversion 2D→3D	0,65	0,66	1,24
$\bar{D}_{eq} (\mu\text{m})$	<b>78</b>	<b>49</b>	<b>3</b>
$f_g$	0,28	0,3	0,26
$\bar{L}_{GB} (\mu\text{m}^2 \cdot \mu\text{m}^{-3})$	0,067	0,089	1,135

## II. SIMULATION DE TRAITEMENTS THERMIQUES

Expérimentalement, nous avons mis en œuvre des vitesses de chauffage très rapides ( $600^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ ). Dans les simulations de traitement thermique servant à reproduire ces expériences, nous pourrions donc négliger cette phase de chauffage. Le traitement débutera à la température de palier. La phase de refroidissement étant rapide, elle sera également négligée. De plus, dans la plupart de nos expériences, le phénomène mis en jeu durant cette dernière phase est plutôt lent (croissance de grains) et ne modifie donc pas la microstructure de manière significative.

Le pas de temps par défaut sera de 1 seconde et sera automatiquement réduit si nécessaire (voir conditions de division du pas de temps dans la partie 1, section II.4.a). La loi donnant la densité de dislocations critique pour le déclenchement de la recristallisation en fonction de la température a été déterminée dans la partie 3, équation 3.8.

Nous considérerons les trois microstructures telles qu'elles ont été décrites à partir de la densité de joints de grains dans la section I de cette partie.

Les paramètres restant à optimiser dans les différentes simulations sont donc les mobilités des joints de grains dans les deux régimes de vitesses de migration des joints de grains,

aits de « recristallisation » (grande vitesse) et de « croissance de grains » (basse vitesse)  $m_{ReX}$  et  $m_{GG}$ , le seuil de transition d'une valeur de mobilité à l'autre  $\Delta E_{th}$  et la constante de germination  $K_g$  (équation 1.21).

Pour identifier les paramètres du modèle, nous réaliserons une détermination basée sur deux observables : la fraction recristallisée et la taille de grains recristallisés. Ces données expérimentales sont issues des expériences décrites dans la partie 3, section II.4. Cependant, les tailles de grains recristallisés moyennes expérimentales sont des données 2D et il est par conséquent nécessaire de les convertir en 3D pour pouvoir les comparer avec les résultats des simulations. Les grains recristallisés étant plutôt équiaxes, on peut raisonnablement appliquer la méthode de Saltykov sur les distributions de tailles de grains recristallisés. Le facteur de conversion entre les tailles moyennes 2D et 3D s'est avérée être en moyenne de 0,75. Nous appliquerons ce facteur à toutes les données de taille de grains expérimentales recueillies dans la partie 3, section II.4.

De plus, il existe expérimentalement une limite basse de la détection des grains qui dépend du pas de mesure choisi pour l'acquisition des cartographies EBSD. En pratique, on ne considère pas comme des grains les groupes de pixels voisins d'orientation cristallographique similaire ayant un nombre de pixels inférieur à trois. Le diamètre du cercle équivalent à la surface de trois pixels est, suivant le type de grille utilisée pour la cartographie EBSD, entre 1,15 et 2 fois la valeur du pas de mesure. On choisit le cas le plus critique de ne pas considérer les grains ayant un diamètre équivalent inférieur à 2 fois la valeur du pas de mesure. Généralement, lors de l'acquisition des cartographies EBSD, le pas de mesure est fixé de manière à représenter 1/10 de la taille moyenne des grains de la microstructure. Ainsi, un grain de taille inférieure à 2/10 de la taille de grains moyenne ne sera pas détecté et donc pas pris en compte dans la valeur moyenne expérimentale. Lors de l'analyse des résultats de la simulation, nous avons par conséquent choisi d'exclure de la moyenne les grains trop petits par rapport à un pas de mesure fictif calculé à partir de la taille de grains moyenne.

#### **Remarque**

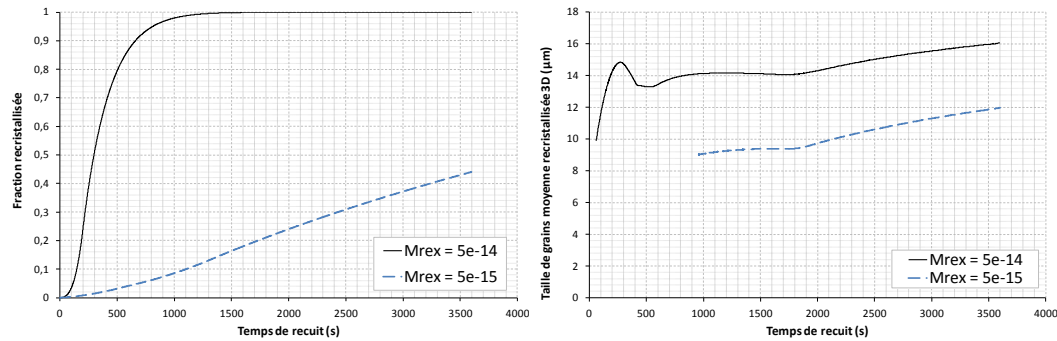
Ce seuil de détection des grains montre clairement l'importance de l'échelle de mesure sur la détection des grains recristallisés et donc sur la détection du début de recristallisation. En effet, avec le critère considéré ici et en fonction de la taille de grains de la microstructure initiale, les grains recristallisés commencent à être détectés alors que la fraction recristallisée peut être significativement non nulle. Il peut donc exister en plus du temps d'incubation nécessaire aux embryons pour devenir des germes, un temps de détection des grains recristallisés lié à l'échelle de la mesure.

### **1. Etude paramétrique du modèle de recristallisation**

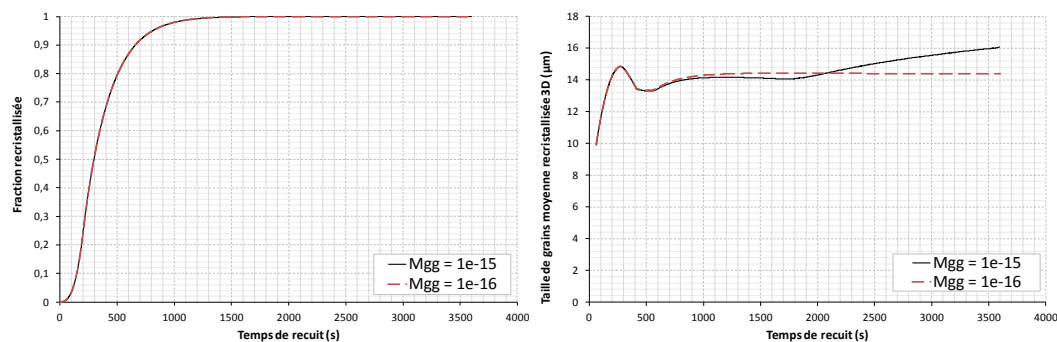
Pour déterminer les valeurs des paramètres du modèle, il est tout d'abord nécessaire de capter les effets de chacun des paramètres à identifier sur la cinétique de recristallisation. Pour cela, nous avons réalisé une étude paramétrique consistant à faire varier chacun des quatre paramètres en conservant les trois autres constants. Pour cela nous avons choisi une microstructure type avec une taille de grains moyenne de 50  $\mu\text{m}$  (distribution log-normale,  $f_g = 0,6$ ) et une densité de dislocations moyenne de  $5 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$  (supérieure à la densité de dislocations critique) avec une distribution log-normale resserrée ( $f_g = 0,8$ ). La simulation de traitement thermique est effectuée à 1000°C pendant 1h.

La figure 4-5 montre l'influence de la mobilité des joints de grains dans les deux régimes, de la constante de germination et du seuil de force motrice entre les régimes de mobilité sur la cinétique de recristallisation (figure 4-5, gauche) et sur l'évolution de la taille de grains recristallisés moyenne (figure 4-5, droite). Les courbes de référence sont tracées en noir.

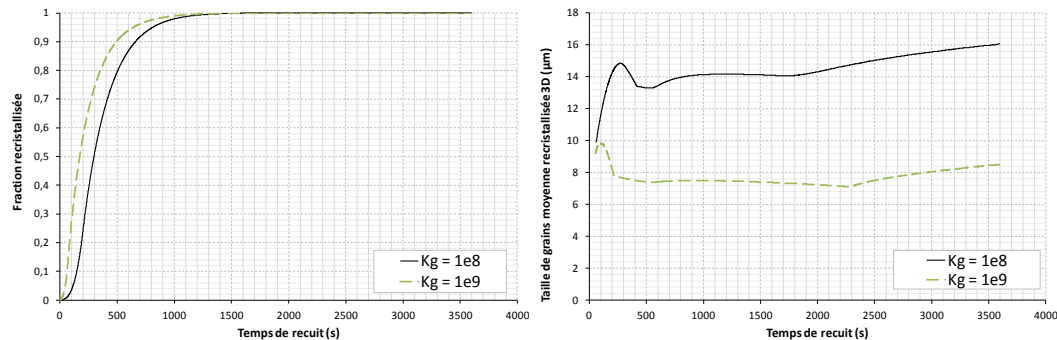
• **MOBILITÉ AUX FORTES VITESSES DE MIGRATION ( $M^4 \cdot J^{-1} \cdot S^{-1}$ )**



• **MOBILITÉ AUX FAIBLES VITESSES DE MIGRATION ( $M^4 \cdot J^{-1} \cdot S^{-1}$ )**



• **CONSTANTE DE GERMINATION ( $S^{-1}$ )**



• **ENERGIE SEUIL POUR LE CHANGEMENT DE RÉGIME DE MOBILITÉ ( $J \cdot M^{-3}$ )**

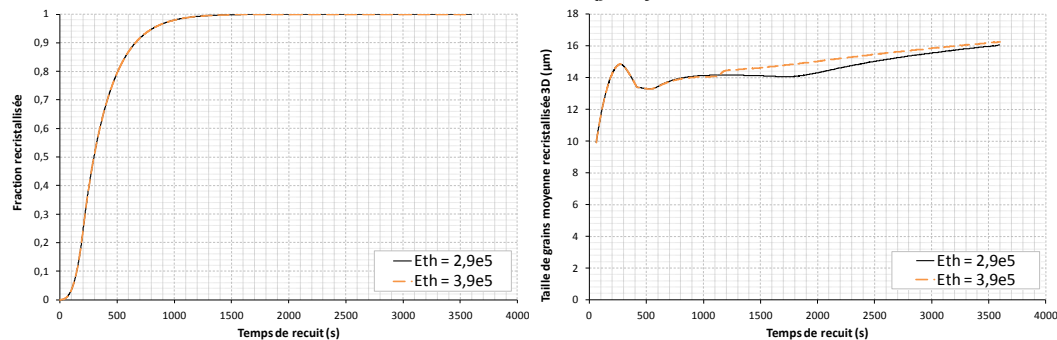


Figure 4-5. Influence des paramètres du modèle sur la cinétique de recristallisation et l'évolution de la taille de grains recristallisés moyenne (courbes de référence en noir)

On peut tout d'abord noter que les conditions de référence permettent une recristallisation complète de la microstructure dès 1500 s de traitement thermique. Il s'en suit alors une phase de croissance des grains dans la microstructure recristallisée. Le pic observé au début de la courbe de la taille de grains moyenne est attribué à la germination. L'apparition des germes est continue tant qu'il reste des grains pour lesquels  $\rho > \rho_{cr}$  alors que la vitesse de migration des joints de grains diminue en raison de la diminution de l'énergie stockée (par restauration statique). Dans la moyenne en nombre, les petits grains prennent alors plus d'importance ce qui fait chuter la taille de grains recristallisés moyenne. Une fois que la germination s'arrête, cette taille moyenne peut à nouveau augmenter.

Lorsque la mobilité  $m_{ReX}$  diminue d'un ordre de grandeur, on observe un ralentissement de la cinétique de recristallisation qui s'accompagne d'une diminution de la taille des grains recristallisés. Une variation de cette mobilité influence, comme attendu, la cinétique de recristallisation et non la phase de croissance de grains. De même, lorsque  $m_{GG}$  diminue d'un ordre de grandeur, on n'observe pas d'effet sur la cinétique de recristallisation mais une stagnation de la taille des grains recristallisés dans la phase de croissance de grains.

Lorsque la constante de germination augmente d'un ordre de grandeur, le nombre de germes apparaissant est plus grand, la fraction recristallisée augmente donc plus vite mais la taille moyenne des grains recristallisés est plus faible. La cinétique de croissance des grains recristallisés est ralentie car la fraction d'interfaces mobiles avec le milieu non recristallisé diminue plus vite.

Enfin lorsque le seuil de transition entre les régimes de mobilité augmente, dans le cas d'une microstructure qui recristallise à 100%, ce paramètre a peu d'influence à la fois sur la cinétique de recristallisation et sur la croissance de grains. Ce paramètre prend toute son importance dans une microstructure partiellement recristallisée car il conduit notamment à une « saturation » de la fraction recristallisée.

Les tendances obtenues lors de cette étude paramétrique sont tout à fait justifiées d'un point de vue physique.

## ***2. Identification des paramètres du modèle de recristallisation sur une microstructure proche des hypothèses de la modélisation***

La microstructure 1 a été choisie car elle peut être raisonnablement approximée par des grains équiaxes et une densité de dislocations moyenne par grain, description appropriée au modèle en champ moyen utilisé. Nous allons donc considérer cette microstructure pour déterminer les paramètres du modèle.

### ***A. IDENTIFICATION DE LA MOBILITE AUX FAIBLES VITESSES DE MIGRATION A 1000°C***

Une stratégie classique consiste à évaluer la mobilité des joints de grains à partir d'une expérience où elle est le seul paramètre influent, c'est-à-dire à partir d'essais de croissance de grains pure. Nous allons donc utiliser ici les données obtenues en croissance de grains à 1000°C. Dans notre cas, deux mobilités sont à identifier mais nous supposerons que lors de cette expérience nous sommes dans un régime de vitesses de migration faibles, donc sous le seuil de transition entre les deux mobilités.  $m_{GG}$  sera donc le seul paramètre ayant un effet sur cette cinétique de croissance de grains.

La microstructure initiale est celle présentée sur la figure 4-1. A partir de cette microstructure, on simule un traitement thermique de 2 h 30 à 1000°C en faisant varier  $m_{GG}$ . On trouve :

$$m_{GG,1000^{\circ}C} = 1,1 \times 10^{-15} m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$$

Cette valeur donne une prédiction satisfaisante de la taille de grains moyenne 3D au cours du temps (figure 4-6). La croissance de grains à 1000°C dans le tantale utilisé dans cette étude s'avère lente, ce qui conduit à une valeur de la mobilité faible.

On remarque une diminution de la taille de grains au début du traitement thermique qui est due à la discrétisation de la microstructure et à la moyenne en nombre. En effet, à ce stade, aucun grain représentatif n'a disparu, le nombre de grains représentatifs est ainsi constant alors que la taille des petits grains diminue et celle des plus gros augmente. La moyenne étant calculée en nombre, les petits grains ont (individuellement) un poids aussi important que les gros, et comme ils sont plus nombreux, on observe une diminution de la taille de grains moyenne.

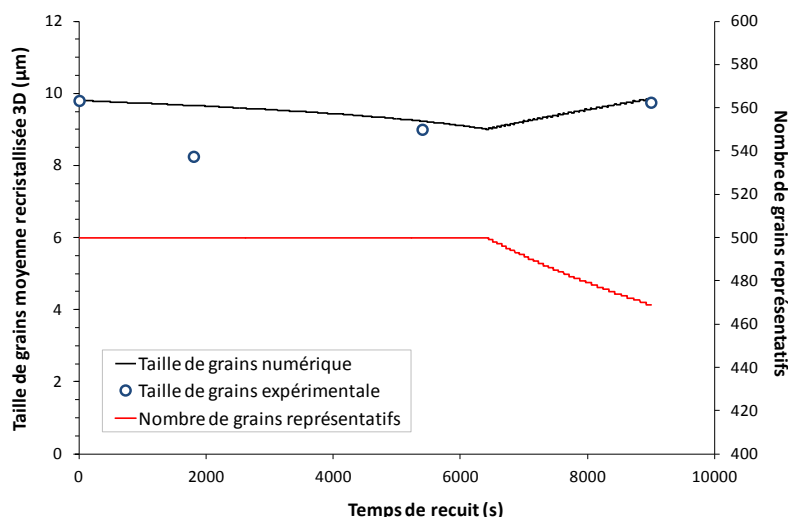


Figure 4-6. Comparaison de la simulation d'un traitement thermique de croissance de grains à 1000°C avec les données expérimentales

Ce sont ces expériences de croissance de grains qui ont motivé le recours à deux valeurs de mobilité selon le régime de force motrice.

#### B. IDENTIFICATION DES AUTRES PARAMETRES A 1000°C

Une fois la mobilité en croissance de grains à 1000°C fixée, il reste à déterminer trois paramètres pour cette température :  $m_{ReX,1000^{\circ}C}$ ,  $\Delta E_{th,1000^{\circ}C}$  et  $K_{g,1000^{\circ}C}$ . Pour cela, nous allons utiliser la cinétique de recrystallisation expérimentale obtenue à 1000°C sur la microstructure 1. Cette microstructure sera décrite avec chacune des trois définitions de la taille de grains développées dans la partie 4, section I.2.

En nous appuyant sur l'étude paramétrique réalisée précédemment, nous avons pu identifier un jeu de paramètres qui est récapitulé dans le tableau 4-3. Les résultats de la simulation correspondante (courbes noires) sont comparés aux données expérimentales (cercles rouges (fraction recrystallisée) et bleus (taille de grains)) sur la figure 4-7. La simulation re-



transcrit bien les données expérimentales et le jeu de paramètres retenu est un compromis entre la prédiction des deux observables.

Tableau 4-3. Paramètres du modèle identifiés à 1000°C sur la microstructure 1

	1000°C
Mobilité $m_{ReX}$ ( $m^4.J^{-1}.s^{-1}$ )	$6 \times 10^{-14}$
Mobilité $m_{GG}$ ( $m^4.J^{-1}.s^{-1}$ )	$1,1 \times 10^{-15}$
Constante de germination $K_g$ ( $s^{-1}$ )	$4 \times 10^8$
Seuil régime de mobilité $\Delta E_{th}$ ( $J.m^{-3}$ )	$2,9 \times 10^5$

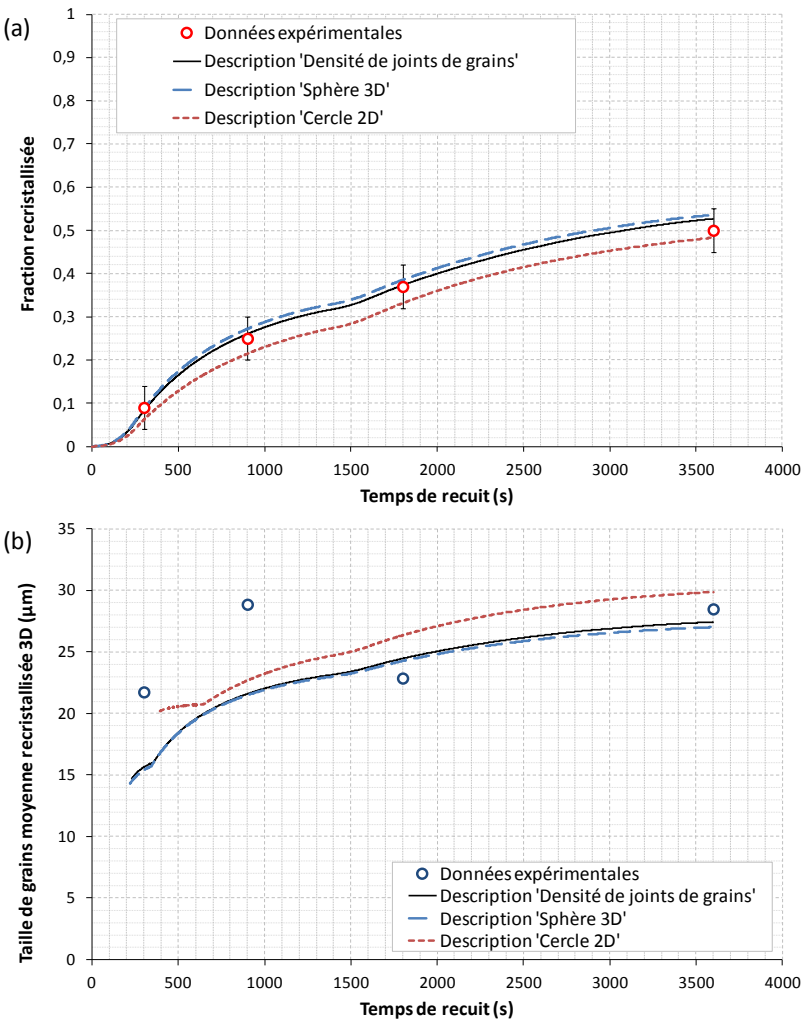


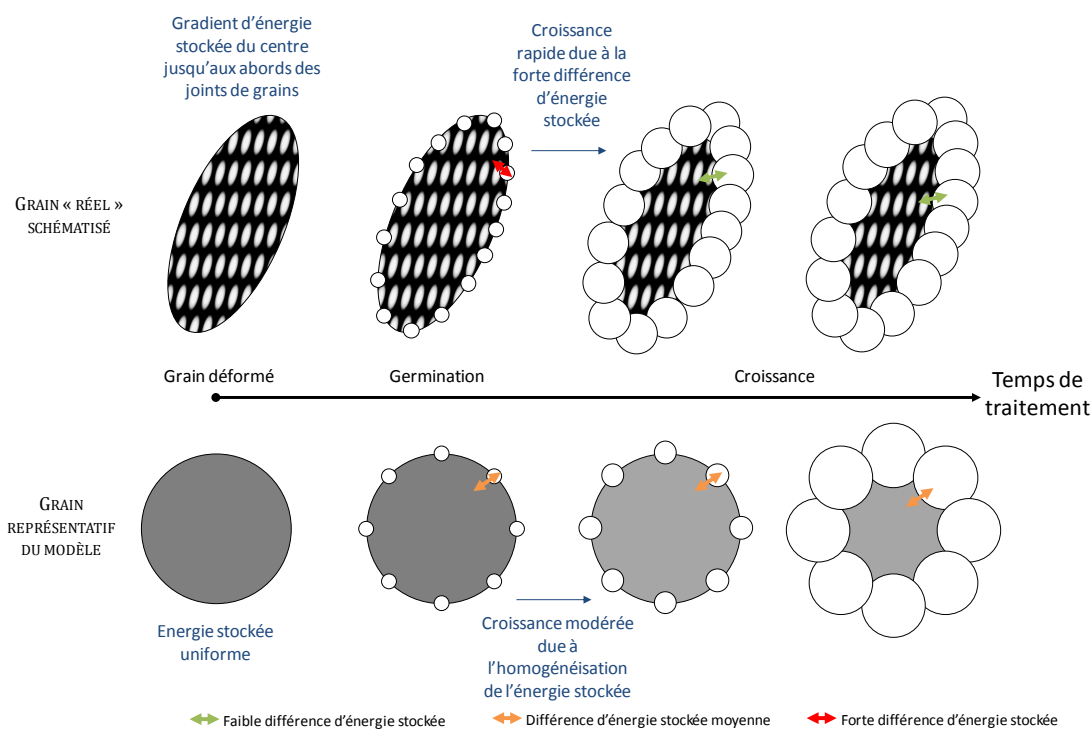
Figure 4-7. Comparaison de la simulation d'un traitement thermique de 1 h à 1000°C de la microstructure 1 avec les données expérimentales pour différentes descriptions de la microstructure initiale

Sur la figure 4-7.b, on voit une nette différence entre les cinétiques de croissance de grains simulées et celles obtenues expérimentalement, sur les temps les plus courts. La cinétique expérimentale montre que les grains recrystallisés atteignent assez rapidement une taille d'environ 25 µm qui va peu évoluer au cours du recuit. Les nouveaux grains apparaissant aux joints de grains, ils vont croître rapidement jusqu'à ce qu'ils entrent en contact les uns avec les autres et/ou qu'ils atteignent des zones moins déformées de la microstructure initiale, comme le centre des anciens grains (figure 4-8). Numériquement, le modèle prend en compte la ren-



contre entre les germes, mais le principe même d'un modèle en champ moyen l'empêche de représenter strictement les hétérogénéités intragranulaires. On peut considérer qu'elles sont prises en compte dans la distribution de densités de dislocations, mais sans l'aspect topologique. La cinétique numérique représente alors une cinétique caractéristique d'une microstructure avec des grains déformés de manière homogène. Cette cinétique est plus lente au départ parce que les grains recristallisés interagissent avec un milieu homogène équivalent dont la densité de dislocations moyenne est plus faible que la valeur réelle aux abords des joints de grains. De la même manière, la vitesse de croissance des grains recristallisés serait surestimée numériquement en fin de croissance, car la valeur moyenne de la densité de dislocations du MHE est plus élevée que celle au centre des grains déformés. Cet effet est atténué par la restauration qui a tendance à diminuer la densité de dislocations moyenne des catégories de grains non recristallisés.

La figure 4-7 montre également l'effet de la description de la microstructure initiale sur le résultat de la simulation de traitement thermique. La description basée sur la densité de joints de grains nous paraît la plus justifiée pour le cas présent d'une recristallisation par germination aux joints de grains, et sera donc conservée par la suite. Cependant, on remarque qu'une description basée sur des sphères issue d'une transformation par la méthode de Saltykov de l'histogramme des diamètres de cercles équivalents 2D, retranscrit quasiment à l'identique les évolutions de la fraction recristallisée et de la taille de grains au cours du traitement thermique. La description en 2D donne des cinétiques plus éloignées mais qui restent toutefois acceptables.



**Figure 4-8. Effet de la non prise en compte des hétérogénéités intragranulaires dans la modélisation de la microstructure**

Dans cette simulation de traitements thermiques, nous avons utilisé la densité de dislocations critique déterminée au bout de 30 min de traitement thermique à 1000°C sur une

éprouvette DECC (partie 3, section II.3). Cette densité de dislocations critique prend donc en compte l'apparition de germes ayant nécessité jusqu'à 30 min de temps d'incubation avant de s'activer. Dans cette simulation, la germination commence dès le premier incrément, il serait donc plus juste d'utiliser une densité de dislocations critique déterminée pour une durée de palier thermique courte. Cette valeur serait représentative de l'énergie stockée nécessaire pour l'activation immédiate d'un germe.

Pour une durée de palier thermique plus courte (3 minutes), la valeur critique de densité de dislocations à 1000°C est peu différente de celle obtenue à 30 min (6,7 contre 6,4 en valeur relative). La figure 4-9 montre que cette légère différence de valeur critique de déclenchement de la recristallisation n'entraîne pas de changement majeur dans la simulation. Logiquement, on observe une augmentation de la taille de grains due à la diminution du nombre de germes qu'accompagne une augmentation de la densité de dislocations critique (équation 1.21). D'après cette observation, nous pouvons supposer que, pour des températures supérieures à 1000°C, la différence de densité de dislocations critiques pour les temps longs et courts ne peut que diminuer. Pour des températures inférieures, il serait judicieux de vérifier si cette différence n'augmente pas au point d'avoir une influence significative sur les résultats de la simulation de traitement thermique.

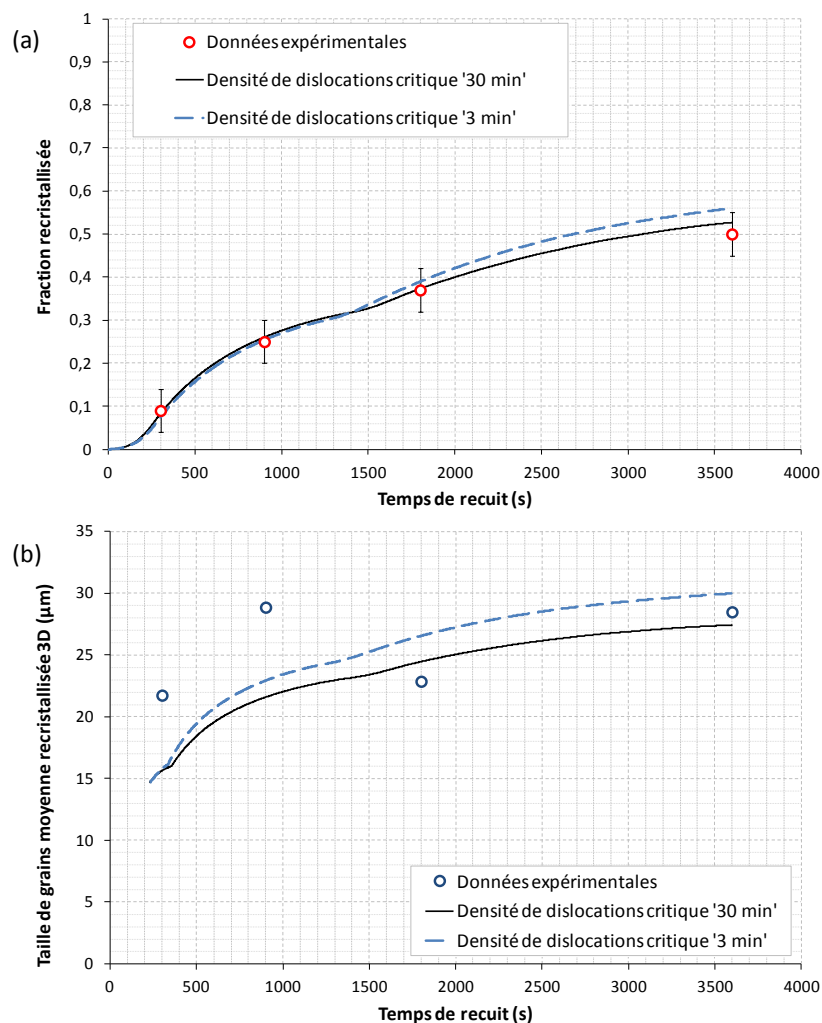


Figure 4-9. Influence de la densité de dislocations critique sur la recristallisation

### C. EFFET DE LA TEMPERATURE SUR LES PARAMETRES DU MODELE - IDENTIFICATION A 1100°C

Tous les paramètres du modèle sont, a priori, fonction de la température, notamment  $m_{ReX}(T)$ ,  $m_{GG}(T)$ ,  $\Delta E_{th}(T)$  et  $K_g(T)$ . Afin d'évaluer leur dépendance à la température, on reproduit le travail d'identification avec la cinétique de recristallisation expérimentale obtenue sur la microstructure 1 à 1100°C. Il manque à notre jeu de données expérimentales une expérience de croissance de grains à 1100°C pour fixer indépendamment des autres paramètres la valeur de  $m_{GG,1100^\circ C}$ . A cette température, quatre paramètres ( $m_{ReX,1100^\circ C}$ ,  $m_{GG,1100^\circ C}$ ,  $\Delta E_{th,1100^\circ C}$  et  $K_{g,1100^\circ C}$ ) sont alors à déterminer.

Les valeurs des paramètres identifiés à 1100°C sont données dans le tableau 4-4 et les résultats de la simulation correspondante sont comparés aux données expérimentales sur la figure 4-10. On retrouve un bon accord entre les résultats obtenus par simulation et ceux obtenus expérimentalement, avec toutefois, à nouveau, une sous-estimation des tailles de grains recristallisés au début du traitement thermique (pour les mêmes raisons que celles évoquées précédemment).

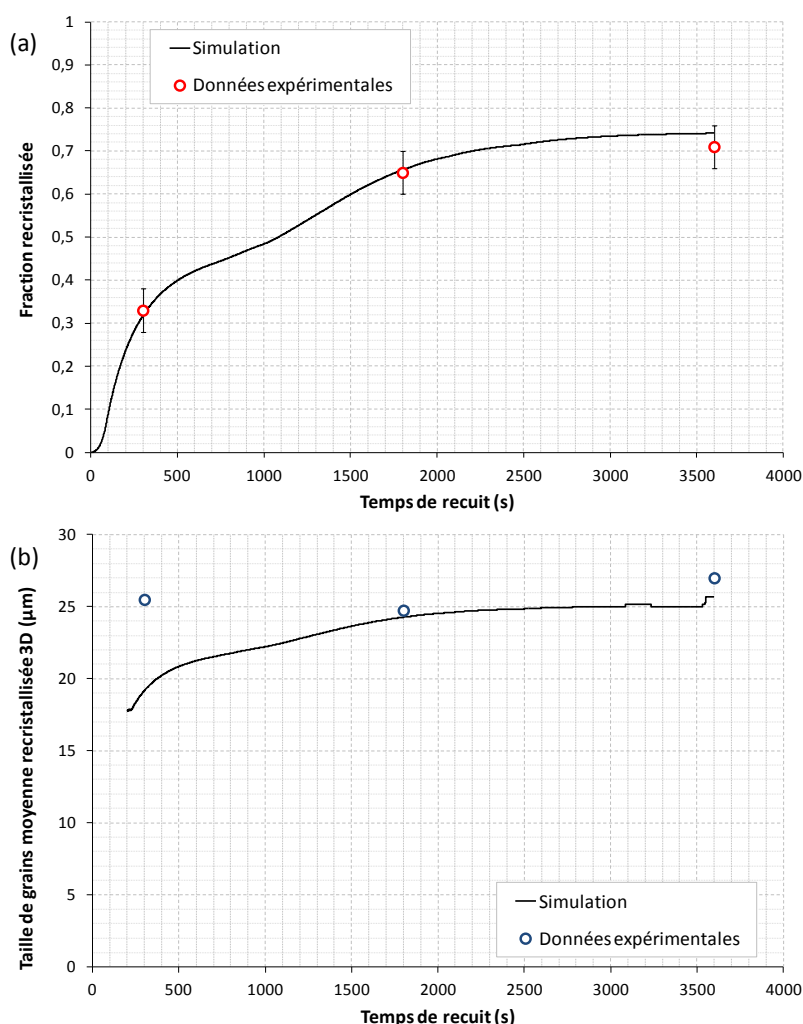


Figure 4-10. Comparaison de la simulation d'un traitement thermique de 1 h à 1100°C de la microstructure 1 avec les données expérimentales

**Tableau 4-4. Paramètres du modèle identifiés à deux températures sur la microstructure 1**

	1000°C	1100°C
Mobilité $m_{ReX}$ ( $m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$ )	$6 \times 10^{-14}$	$18 \times 10^{-14}$
Mobilité $m_{GG}$ ( $m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$ )	$1,1 \times 10^{-15}$	$3 \times 10^{-15}$
Constante de germination $K_g$ ( $s^{-1}$ )	$4 \times 10^8$	$5 \times 10^8$
Seuil régime de mobilité $\Delta E_{th}$ ( $J \cdot m^{-3}$ )	$2,9 \times 10^5$	$2,8 \times 10^5$

Le tableau 4-4 permet de comparer les valeurs des paramètres de mobilité et de germination pour les températures de 1000°C et 1100°C. On constate tout d'abord que les valeurs de mobilité obtenues aux deux températures sont cohérentes, la mobilité des joints de grains augmentant avec la température.

A partir des valeurs de mobilité obtenues en simulation pour chaque régime, on peut identifier les paramètres  $m_{0,ReX}$ ,  $m_{0,GG}$  et  $Q_{m,ReX}$ ,  $Q_{m,GG}$  (équation 1.15) :

$$m_{0,ReX} = 2,1 \times 10^{-7} m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$$

$$Q_{m,ReX} = 160 kJ \cdot mol^{-1}$$

$$m_{0,GG} = 1,1 \times 10^{-9} m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$$

$$Q_{m,GG} = 146 kJ \cdot mol^{-1}$$

Les énergies d'activation de la mobilité des joints de grains sont proches pour les deux régimes. Ce résultat est conforme à ce que l'on pouvait attendre. L'autodiffusion en volume étant le mécanisme impliqué dans la migration des joints de grains dans les deux régimes de vitesses de migration, l'énergie d'activation de la mobilité des joints de grains de la loi d'Arrhénius doit être sensiblement la même.

Nous avons pu noter, grâce à l'équation 3.6 que le terme pré-exponentiel  $m_0$  dépend lui aussi de la température. Dans l'identification réalisée ici, nous considérons que, sur la plage de 1000°C-1100°C, ce terme varie peu et qu'il peut donc être choisi constant.

A partir des données de la littérature et de l'expression du terme pré-exponentiel de la loi de mobilité (partie 3, section II.2.f), on estime une autre valeur de  $m_0$  à 1000°C ( $2,5 \times 10^{-7} m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$ ). On constate notamment que la valeur du terme  $m_{0,ReX}$  ( $2,1 \times 10^{-7} m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$ , mobilité la plus importante) identifiée ici est deux ordres de grandeurs inférieure. L'expression de la mobilité utilisée dans la partie 3 est valable pour un métal pur à 100%. La présence d'impuretés pourrait donc être à l'origine de cette différence.

Malgré tout, les énergies d'activation pour la migration des joints de grains sont du même ordre de grandeur ( $160 kJ \cdot mol^{-1} / 146 kJ \cdot mol^{-1}$  par rapport à  $180 kJ \cdot mol^{-1}$ ) ce qui correspond environ à la moitié de l'énergie d'activation de l'autodiffusion du tantale en volume (entre  $360 kJ \cdot mol^{-1}$  et  $460 kJ \cdot mol^{-1}$  (Neumann & Tuijn 2009)). Cela suggère que l'effet de la température est bien représenté par le modèle.

Au final, la comparaison des valeurs de mobilité issues de différentes techniques ou méthodes demanderait un examen particulier, notamment pour s'assurer que les forces motrices utilisées pour déterminer celles-ci sont comparables (ex : définition et dimensionnalité de la taille de grains).

Le dernier paramètre de mobilité que représente le seuil entre les régimes de recristallisation et de croissance de grains semble varier peu avec la température. Il est d'ailleurs assez difficile d'évaluer a priori la variation de ce paramètre en fonction de la température qui dé-

pend de la nature des atomes en solution, de leur vitesse de migration (dépendant également de la densité de dislocations) par rapport à la vitesse de migration des joints de grains.

La constante de germination (tableau 4-4) semble également augmenter avec la température. Ce résultat est cohérent avec le fait que la formation d'un germe est pilotée par la restauration et la diffusion qui sont des phénomènes thermiquement activés. Une augmentation de la température facilite donc en principe la germination. L'effet n'est d'ailleurs pas uniquement porté par la constante de germination mais également par la diminution de la densité de dislocations critique (équation 1.21).

### 3. Réponse du modèle au type de microstructure initiale

#### A. SIMULATION D'UN TRAITEMENT THERMIQUE A 1000°C SUR LA MICROSTRUCTURE 3

La microstructure 1 a été produite pour rester proche de la description de la microstructure faite dans le modèle. Cependant, comme nous avons pu le voir dans la partie 2 section III, aux grandes déformations la microstructure du tantale peut être complètement différente. C'est pourquoi nous avons choisi de simuler un traitement thermique sur la microstructure 3, issue de la fragmentation des grains pendant une déformation à froid.

Dans un premier temps, la microstructure initiale a donc été modifiée selon la description faite dans le tableau 4-2 (distributions de tailles de grains équivalente à une densité de joints de grains et de densités de dislocations équivalentes). Le traitement thermique s'étend sur 30 min à une température de 1000°C. Les résultats obtenus en simulation sont présentés sur la figure 4-11 (courbes noires). La simulation de ce traitement thermique ne retranscrit pas correctement la microstructure de fin de recristallisation. Pour 30 min de recuit, la simulation prédit une fraction recristallisée correcte mais surestime la taille moyenne des grains recristallisés.

Ce cas test présente toutefois la singularité d'avoir une taille de grains moyenne initiale petite et comparable à la taille des germes (de l'ordre de 1  $\mu\text{m}$ ). Le matériau a en effet développé au cours de la déformation une structure de dislocations en cellules très bien définie, à tel point que toutes ces cellules constituent des germes potentiels dès le début du traitement thermique. Une grande partie de ces cellules sont d'ailleurs fortement désorientées entre elles et peuvent donc être considérées comme des grains. Dans ce cas, il apparaît difficile de garder une modélisation de la recristallisation basée sur la germination telle que nous l'entendons habituellement, c'est-à-dire l'apparition de nouveaux grains recristallisés dans les grains de la microstructure déformée. La recristallisation va donc se produire par la croissance anormale de certains grains ou sous-grains ayant notamment une densité de dislocations plus faible que leur voisinage. Pour simuler cette recristallisation SANS germination, la distribution de tailles de grains reste la même que dans la simulation précédente AVEC germination. On suppose alors qu'une distribution de densité de dislocations, avec une valeur maximale inférieure à la valeur critique pour le déclenchement de la germination, est présente à l'intérieur des cellules/grains, contribuant à la force motrice pour la migration des joints de grains. On fixe cette valeur à  $7,5 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ , avec un paramètre de largeur de distribution  $f_d$  de 0,4. Cette modification de la distribution de densités de dislocations par rapport à celle déterminée à partir de la loi de comportement nous renseigne sur les limites de cette approche et sur la

notion même de densité de dislocations équivalente. En effet, la densité de dislocations équivalente est représentative d'un état de contrainte, lequel, dans le cas d'une fragmentation de la microstructure, n'est plus uniquement dû à la présence de dislocations réparties uniformément mais résulte également de la taille des sous-grains ou grains formés. Il est donc logique que la valeur de densité de dislocations à l'intérieur des sous-grains soit inférieure à la valeur estimée à partir de la loi de comportement.

Cette simulation (figure 4-11, courbes en tirets bleus) permet d'obtenir une taille de grains moyenne très proche de la taille de grains de  $9,8 \mu\text{m}$  obtenue expérimentalement après 30 min de traitement thermique à  $1000^\circ\text{C}$ . La cinétique de recristallisation est également similaire à la cinétique AVEC germination. Néanmoins, il conviendrait de compléter notre jeu de données expérimentales pour valider cette cinétique en réalisant des traitements thermiques plus courts.

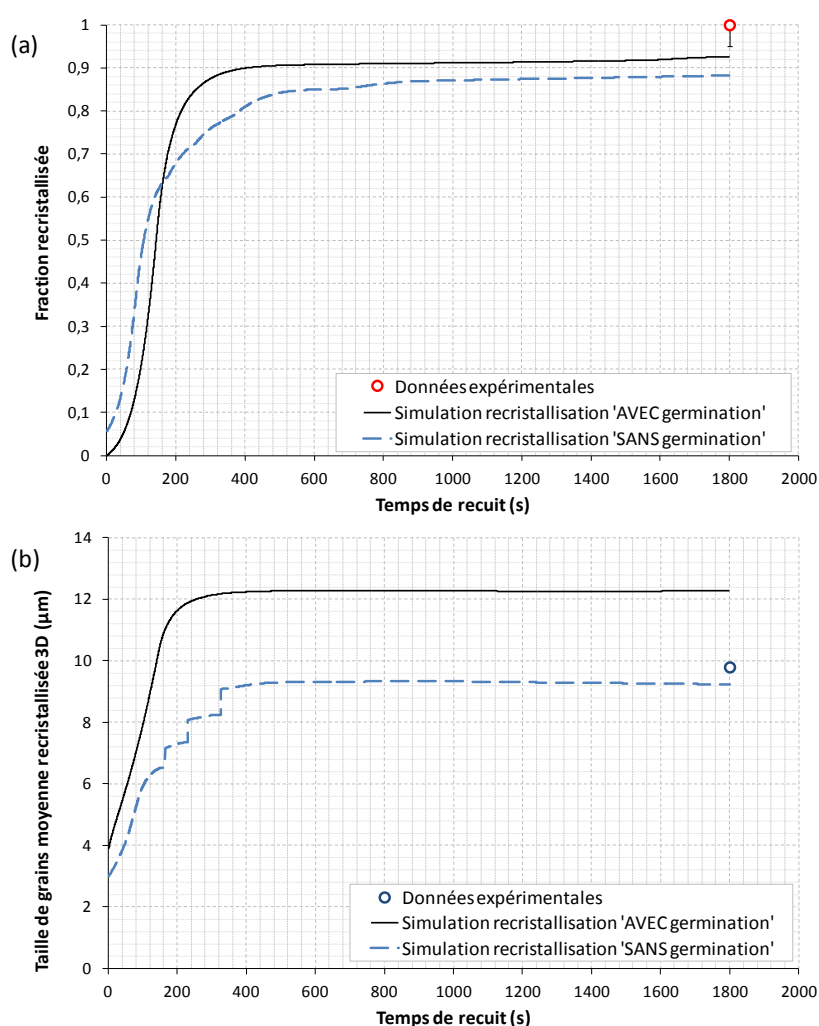


Figure 4-11. Comparaison de deux types de simulation de la recristallisation au cours d'un traitement thermique de 30 min à  $1000^\circ\text{C}$  de la microstructure 3 avec les données expérimentales

#### B. SIMULATION D'UN TRAITEMENT THERMIQUE A $1000^\circ\text{C}$ SUR LA MICROSTRUCTURE 2

Nous avons testé le modèle pour deux microstructures très différentes, typiques de faible et de très forte déformation. La microstructure 2 est une microstructure intermédiaire,



on y retrouve de gros grains allongés comme dans la microstructure 1. Certaines zones ne sont pas bien résolues dans les conditions d'acquisition choisies pour réaliser la cartographie EBSD, ce qui traduit de fortes désorientations intragranulaires voire même de fragmentation des grains faisant localement se rapprocher la microstructure 2 de la microstructure 3.

Une simulation d'un traitement thermique de 1h à 1000°C a été effectuée pour la microstructure 2. Cette simulation permet une nouvelle fois de tester les capacités du modèle et du jeu de paramètres identifié à rendre compte de cinétiques expérimentales. Les résultats présentés sur la figure 4-13 montrent un mauvais accord entre la fraction recristallisée expérimentale et celle prédite par simulation. La taille de grains recristallisés est quant à elle assez bien prédite. La prise en compte de l'augmentation de la densité de joints de grains et de la légère augmentation de la densité de dislocations équivalente ne suffit pas à accélérer suffisamment la cinétique de germination.

Par rapport à la microstructure 1, la microstructure 2 présente une densité de dislocations équivalente peu différente ( $2,35 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$  contre  $2,17 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ ) malgré une déformation équivalente deux fois plus élevée. Cependant, la cinétique de recristallisation de cet échantillon 2 est beaucoup plus rapide. Cette accélération de la cinétique pour une même température est attribuée à la germination qui serait largement facilitée dans la microstructure 2 grâce à la formation plus aboutie d'une sous-structure de dislocations ou à une fragmentation partielle des grains au cours de la déformation (voir partie 2, section III.3). Le modèle ne permet pas de représenter la cinétique de formation de cette sous-structure et donc l'effet de l'augmentation de la quantité de déformation sur la cinétique de recristallisation. On peut également noter qu'une augmentation de la constante de germination ne suffit pas à bien représenter les données expérimentales à la fois en termes de fraction recristallisée et de taille de grains recristallisés. Il est également possible que la germination ne soit plus, ici, limitée aux zones proches des joints de grains, ce qui remettrait en cause une des hypothèses du modèle utilisé. On voit en effet sur la figure 4-12, que certains grains présentent des désorientations intragranulaires importantes, plus uniquement aux abords des joints de grains, qui pourraient entraîner une germination au cœur des grains.

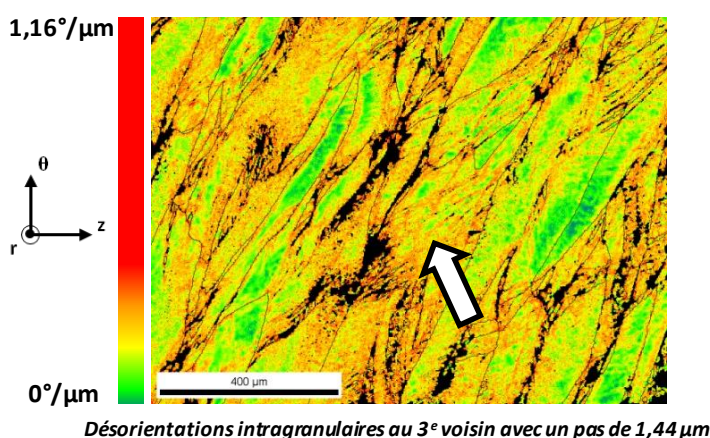


Figure 4-12. Cartographie des désorientations intragranulaires dans la microstructure 2



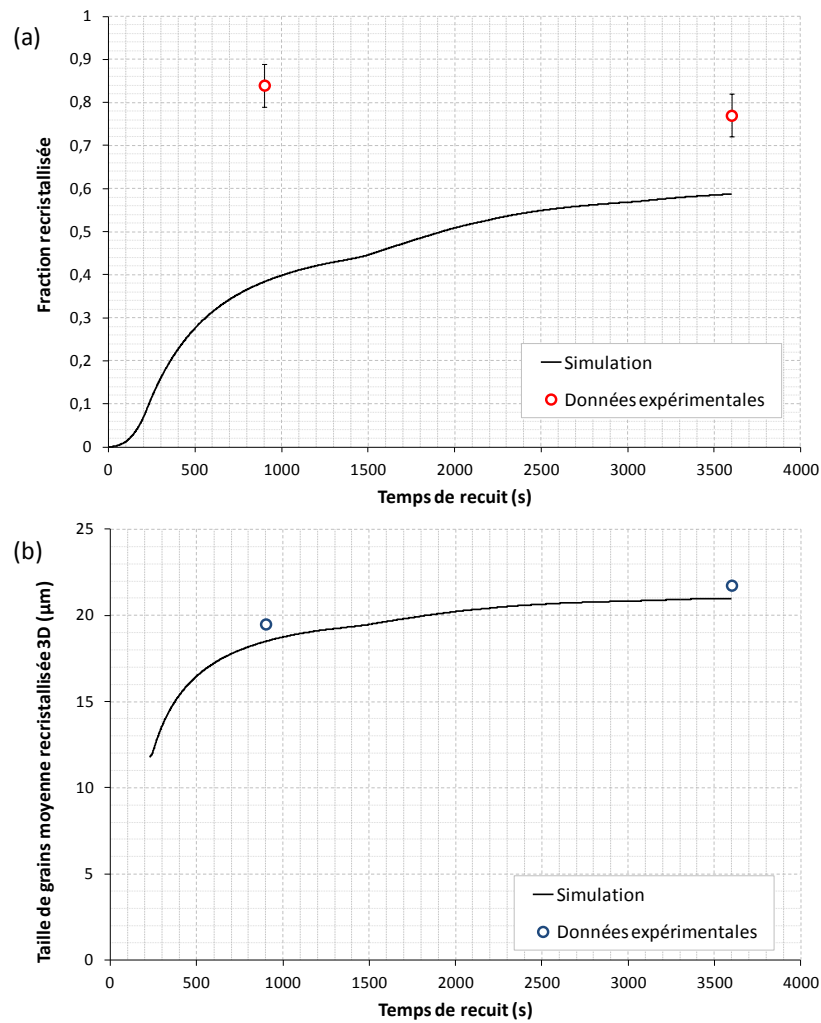


Figure 4-13. Comparaison de la simulation d'un traitement thermique de 1 h à 1000°C de la microstructure 2 avec les données expérimentales

### III. PERSPECTIVE D'AMELIORATION DE L'IDENTIFICATION DES PARAMETRES ET DU MODELE

La modélisation de la recrystallisation montre des résultats encourageants pour des microstructures faiblement déformées (type microstructure 1) et très fortement déformées (type microstructure 3). Cependant, le modèle et les paramètres identifiés ne permettent pas de prédire l'évolution des microstructures intermédiaires. Afin de conforter les résultats obtenus et d'étendre la modélisation à tout type de microstructures, plusieurs voies complémentaires sont à envisager : réaliser une meilleure identification des paramètres du modèle, enrichir la base de données expérimentales et décrire plus fidèlement la complexité de la microstructure de déformation.

#### 1. Amélioration de l'identification des paramètres du modèle

L'estimation des paramètres de mobilité et de la constante de germination par une méthode « itérative » permet d'obtenir un premier jeu de paramètres qui n'est pas forcément

la solution optimale au problème. Différentes méthodes d'optimisation pourraient être couplées aux simulations de traitement thermique pour minimiser l'erreur entre les résultats numériques et expérimentaux.

## ***2. Enrichissement de la base de données expérimentale***

Au cours du chapitre, nous avons pu noter un certain nombre d'expériences complémentaires qu'il serait essentiel de réaliser pour conforter les résultats obtenus :

- Traitements thermiques de croissance de grains pure à 1100°C,
- Traitements thermiques courts <30 min à 1000°C sur la microstructure 3 pour décrire la progression de la recristallisation.

La présence de gros grains dans la microstructure dans son état de réception, lesquels vont générer des hétérogénéités au cours de la déformation, rend les résultats expérimentaux très spécifiques et parfois statistiquement non représentatifs du comportement moyen du tantale pur en recristallisation. L'identification des paramètres d'un modèle à champ « moyen » sur une telle microstructure peut donc engendrer des erreurs. L'idéal serait de confirmer les paramètres identifiés sur une microstructure du type microstructure 1 avec des grains plus petits (diamètre moyen de 50  $\mu\text{m}$  environ) et homogènes.

Enfin, les paramètres, notamment les valeurs de mobilité, peuvent être dépendants de l'approvisionnement et de la teneur du tantale en impuretés. Il serait donc nécessaire de vérifier l'influence de la composition exacte sur le jeu de paramètres identifié pour pouvoir, par la suite, appliquer celui-ci à n'importe quel approvisionnement.

## ***3. Perspectives d'amélioration du modèle de recristallisation statique***

L'application du modèle en champ moyen sur des microstructures telles que celles utilisées dans ces travaux a permis de montrer la nécessité d'enrichir le modèle dans sa gestion de la phase de germination de la recristallisation, laquelle ressort comme un point essentiel à améliorer dans la modélisation de la recristallisation. A travers la germination, c'est en fait à une description plus fidèle de la complexité de la microstructure de déformation à laquelle il faut arriver. Il faut également bien comprendre le lien qui existe entre microstructure de déformation et germination pour établir des lois qui soient adaptées au problème de la recristallisation statique.

Nous l'avons vu, une première étape dans la description de la microstructure de déformation consiste à bien choisir comment définir la taille de grains. En plus de l'analyse réalisée ici, d'autres méthodes pourraient être appliquées notamment pour transformer des ellipses 2D en ellipsoïdes 3D (méthode de type Saltykov sur des ellipses).

La sous-structure de déformation qui se forme dans le tantale n'est pas du tout prise en compte dans le modèle, sauf lorsque la formation de celle-ci atteint un point où quasiment toutes les cellules sont devenues des grains (microstructure de type 3). Dans les cas intermédiaires où la sous-structure est en formation (microstructure mixte de type 2), la loi de germination actuelle ne permet pas de reproduire l'effet de la sous-structure en cellules de dislocations sur la germination. Une solution serait d'introduire de nouvelles variables d'état permettant de décrire cette sous-structure en termes de taille et de désorientation cristallographique

(H Zurob et al. 2006; Brechet & Martin 2006). On peut imaginer de la même manière que pour la taille de grain, une distribution de tailles et de désorientations de cellules qui évoluerait avec la déformation, la restauration et la recristallisation. Dans ce cas, il faudrait adapter la loi de restauration pour qu'elle rende compte, de manière moyennée, de la sous-structure et de son évolution avec la température. La loi de germination serait ainsi basée sur l'activation des cellules ayant atteint les conditions critiques de germination (taille, désorientation, différence d'énergie stockée avec l'environnement). La détermination des distributions de taille et de désorientation de cellules demanderait un travail de caractérisation complet des sous-structures de déformation dans le tantale et la calibration de lois de restauration. Comme pour la densité de dislocations, on peut envisager deux voies :

1. La première voie consisterait à caractériser expérimentalement la microstructure après déformation (analyse EBSD), méthode probablement très coûteuse en temps et incompatible avec un usage industriel du modèle.
2. La deuxième solution serait de modéliser la formation de la sous-structure au cours de la déformation à partir de la modélisation en champ moyen en conditions dynamiques avec un enrichissement des variables d'état, pour rendre compte de la formation de la sous-structure. Il s'agirait donc d'établir des lois d'évolution de la taille de cellules et de leur désorientation en fonction de la déformation, de la vitesse de déformation et de la température.

## SYNTHESE

Le modèle en champ moyen présenté dans la première partie de ce manuscrit a été appliqué au tantale pur afin d'identifier les paramètres du modèle et de tester sa capacité à reproduire les évolutions microstructurales au cours d'un traitement thermique pour différents types de microstructures de déformation.

La première étape consiste à définir une taille de grains. La déformation engendrant des grains non sphériques, nous avons défini une distribution de tailles de grains sphériques équivalentes à la densité de joints de grains mesurée expérimentalement dans la microstructure en faisant l'hypothèse de grains ellipsoïdaux de révolution. Cette modification permet de prendre en compte la quantité de joints de grains, donnée cruciale dans le cas d'une germination en collier. Elle permet aussi d'obtenir, en faisant quelques hypothèses simplificatrices, une distribution de tailles de grains en 3D, utilisable directement par le modèle de recristallisation.

La microstructure 1 a été produite pour rester proche de la description de la microstructure faite dans le modèle. C'est donc sur cette microstructure que les simulations de traitements thermiques ont été réalisées pour identifier les paramètres du modèle. Une partie des paramètres ayant été fixés par des expériences spécifiques (densité de dislocations critique, loi de restauration), 4 d'entre eux ont nécessité une identification à partir d'expériences de recristallisation et de croissance de grains à 1000°C et 1100°C :  $m_{ReX}$ ,  $m_{GG}$ ,  $\Delta E_{th}$  et  $K_g$ . Ces simulations ont également permis de définir leur dépendance à la température (tableau 4-3, appelé ci-dessous).

**Tableau 4-4. Paramètres du modèle identifiés pour le tantale pour deux températures**

	1000°C	1100°C
Mobilité $m_{ReX}$ ( $m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$ )	$6 \times 10^{-14}$	$18 \times 10^{-14}$
Mobilité $m_{GG}$ ( $m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$ )	$1,1 \times 10^{-15}$	$3 \times 10^{-15}$
Constante de germination $K_g$ ( $s^{-1}$ )	$4 \times 10^8$	$5 \times 10^8$
Seuil régime de mobilité $\Delta E_{th}$ ( $J \cdot m^{-3}$ )	$2,9 \times 10^5$	$2,8 \times 10^5$

Si l'on admet que les mobilités suivent classiquement une loi d'Arrhénius avec un terme pré-exponentiel constant :

$$m_{ReX \text{ ou } GG} = m_{0,ReX \text{ ou } GG} e^{-\frac{Q_{m,ReX \text{ ou } GG}}{RT}} \quad \text{Equation 1.15}$$

Avec,

$$m_{0,ReX} = 2,1 \times 10^{-7} m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$$

$$Q_{m,ReX} = 160 kJ \cdot mol^{-1}$$

$$m_{0,GG} = 1,1 \times 10^{-9} m^4 \cdot J^{-1} \cdot s^{-1}$$

$$Q_{m,GG} = 146 kJ \cdot mol^{-1}$$

Les conditions d'identification pourraient cependant être améliorées par l'utilisation d'une méthode objective d'optimisation et par un complément de données expérimentales.

La microstructure 1 étant représentative d'une faible déformation, nous avons également testé le modèle sur une microstructure très fortement déformée (microstructure 3). Avec une description judicieuse de la microstructure initiale, le modèle prédit une fraction

recristallisée et une taille de grains recristallisés moyenne proches des valeurs expérimentales. Un complément de données expérimentales serait ici également nécessaire pour décrire la progression de la recristallisation.

Pour des microstructures mixtes (type microstructure 2) entre la microstructure 1 et la microstructure 3, le modèle ne permet pas encore de reproduire correctement les évolutions microstructurales au cours d'un traitement thermique. Cela met en avant la nécessité d'enrichir la description de la microstructure de déformation pour, notamment, bien gérer la phase de germination de la recristallisation.

Aujourd'hui, le modèle de recristallisation en champ moyen permet, en considérant une description adéquate de la microstructure déformée, de simuler les traitements thermiques sur des microstructures faiblement ou très fortement déformées, mais nécessiterait donc une extension pour prédire les microstructures de recuit à partir de n'importe quel type de microstructure.



## **CONCLUSION.**



Le travail réalisé durant cette thèse porte sur la recristallisation statique du tantale pur, avec deux principaux objectifs:

- 1/ Approfondir la connaissance des mécanismes d'évolution microstructurale dans le tantale au cours d'un traitement thermique. Cela implique principalement la recristallisation statique discontinue, et, dans une moindre mesure, la restauration et la croissance de grains.
- 2/ Prédire la microstructure obtenue à l'issue d'un traitement thermique pour un échantillon en tantale pur en fonction de la microstructure initiale déformée et des conditions de mise en œuvre du traitement thermique.

## SYNTHESE

---

La prédiction des microstructures de recuit nécessite un modèle permettant de décrire les évolutions métallurgiques ayant lieu pendant un traitement thermique qui est défini par sa température et son temps de palier mais également par la vitesse de chauffage (vitesse de refroidissement négligée). Nous avons choisi d'utiliser un modèle semi-analytique en champ moyen pour représenter la recristallisation, la restauration et la croissance de grains. Un panorama des modèles existants nous a permis de justifier de l'intérêt d'une telle modélisation dans un contexte industriel. La modélisation en champ moyen permet d'avoir des temps de simulation courts tout en décrivant dans une certaine mesure les hétérogénéités de la microstructure et leurs effets sur les évolutions microstructurales. Pour rendre compte des spécificités du matériau et des mécanismes de la recristallisation statique, ce modèle, initialement formulé pour la recristallisation dynamique, a nécessité des modifications.

**Le modèle a notamment été adapté pour inclure une double mobilité représentant l'effet d'atomes en solution solide ségrégés aux joints de grains sur la migration de ceux-ci.** Une mobilité correspond aux fortes vitesses de migration et la deuxième, plus faible, correspond aux vitesses de migration plus lentes.

Le modèle choisi décrit la microstructure par la combinaison d'une distribution de densités de dislocations et d'une distribution de tailles de grains sphériques.

Cette description de la microstructure correspond assez bien à des microstructures de tantale faiblement déformées. Dans ce cas, les grains présentent des formes plutôt ellipsoïdales et des dislocations à l'intérieur des grains qui paraissent localement réparties de manière relativement uniforme.

La déformation plastique à froid engendrant des grains non sphériques, une bonne description de la microstructure nécessite un choix adapté de la définition de la taille de grains.

**Nous avons alors défini une taille de grains sphériques équivalente à une densité de joints de grains mesurée expérimentalement.**

Cette modification permet de prendre en compte la quantité de joints de grains, donnée cruciale dans le cas d'une germination aux joints de grains.

A ce stade de déformation, le comportement mécanique du tantale est principalement dicté par la quantité de dislocations présente dans la microstructure. On définit ainsi une den-

sité de dislocations équivalente représentative d'un état de contrainte macroscopique, sachant que celui-ci peut, dans une moindre mesure, être influencé par d'autres facteurs (impuretés, taille de grains). Le lien entre la densité de dislocations équivalente et la contrainte macroscopique se fait à travers la loi de comportement.

**A partir de théories et de lois déjà existantes pour le tantale provenant de travaux réalisés précédemment au CEA DAM Valduc, nous proposons ici de nouveaux paramètres afin d'améliorer la modélisation, basée sur une densité de dislocations, du comportement mécanique du tantale.**

La modélisation du comportement mécanique permet d'avoir une description de la densité de dislocations équivalente en tout point d'une pièce lorsque l'on est en mesure de simuler la déformation plastique précédant le traitement thermique.

Une mesure de microdureté Vickers sur la pièce déformée représente une alternative expérimentale à la précédente méthode.

**Nous avons déterminé une loi permettant de déterminer la densité de dislocations équivalente à partir d'un essai de dureté Vickers avec une charge de 300 gf.**

Les conditions de mise en œuvre de l'indentation Vickers pour le tantale sont à prendre en compte.

**Nous avons pu mettre en évidence que la dureté Vickers est fortement dépendante du temps de maintien de la charge en raison du caractère visqueux du tantale à température ambiante.**

Ainsi la loi reliant dureté et densité de dislocations équivalente a été établie pour un temps de maintien de 5 s et pour un temps de 30 s qu'il serait judicieux d'utiliser à l'avenir pour s'affranchir de la variabilité associée à l'effet de viscosité.

Cette vision mécanique a été confrontée à des observations de microstructures déformées.

**Ces observations nous ont permis de mettre en évidence l'anisotropie de comportement à l'échelle du grain. Cette anisotropie couplée aux hétérogénéités de la sollicitation mécanique à l'échelle locale, conduisent à des variations de la densité de dislocations locale à l'intérieur même d'un grain.**

Certaines zones d'un grain, et plus particulièrement les zones où l'incompatibilité de déformation est la plus forte comme les abords des joints de grains et des jonctions triples, montrent de plus fortes désorientations intragranulaires après déformation que le centre des grains.

**Conformément à la théorie de la co-rotation évoquée dans la littérature, nous avons mis en évidence, à partir d'une expérience réalisée sur un oligocristal de tantale, que l'augmentation des désorientations intragranulaires au niveau des joints de grains est reliée au fait que les grains de part et d'autre du joint subissent une rotation macroscopique différente sous l'effet de la déformation.**

Dans la perspective d'une modélisation prédictive des microstructures de recuit, il est nécessaire d'identifier les phénomènes impliqués dans les évolutions métallurgiques dans le tantale.

**Nous avons constaté que la restauration dans le tantale est un phénomène qu'il ne faut pas négliger.**

La restauration est active dès 600°C. Il est donc important de prendre en compte la vitesse de chauffage lorsque l'on souhaite décrire la compétition entre restauration et recristallisation. Dans le cas des microstructures faiblement déformées que l'on peut décrire à partir d'une densité de dislocations équivalente, une loi décrivant la diminution de la densité de dislocations équivalente par restauration a été proposée dans (Houillon 2009).

**Cette loi a été ajustée en utilisant la relation dureté-densité de dislocations équivalente établie ici.**

La recristallisation a été directement observée et caractérisée à différentes échelles **sur des microstructures faiblement déformées.**

A l'échelle locale (traitement thermique *in situ*) :

- **les nouveaux grains recristallisés apparaissent dans les zones présentant les plus fortes désorientations intragranulaires**, principalement le long des anciens joints de grains.
- **La germination est plutôt de type continu.** La vitesse de germination diminue au cours du temps, les sites de germination devenant plus rares au fur et à mesure que la recristallisation progresse.
- **Pendant la recristallisation, les joints des grains recristallisés sont souvent tortueux en raison des variations locales d'énergie stockée.** Ces joints de grains deviennent plus rectilignes pendant la croissance de grains.

A l'échelle macroscopique, nous avons déterminé :

- **une loi décrivant le seuil critique de déclenchement de la recristallisation en fonction de la température grâce à des traitements thermiques sur des éprouvettes à gradient de densité de dislocations.** La densité de dislocations critique apparaît comme peu dépendante de la durée du traitement thermique et, l'effet de la restauration étant corrigé, cette loi est indépendante de la vitesse de chauffage.
- **des cinétiques de recristallisation**, aspect manquant particulièrement dans la littérature. Cette étude s'est portée principalement sur l'évaluation de l'effet des paramètres thermomécaniques. La température et l'augmentation de la densité de dislocations ont pour effet d'accélérer la cinétique. Nous avons également pu constater que les hétérogénéités de déformation induisent des hétérogénéités dans la microstructure de recuit.

Ces cinétiques de recristallisation, associées à une cinétique de croissance de grains à 1000°C, ont ensuite permis de calibrer les paramètres du modèle de recristallisation dans des conditions favorables, notamment au niveau de la description de la microstructure.

**Un jeu de paramètres valable dans la gamme 1000°C-1100°C a été déterminé. L'évolution observée des paramètres en fonction de la température est tout à fait justifiée physiquement.**

L'objectif de ce modèle est de prédire les microstructures de recuit à partir de n'importe quel type de microstructure initiale, incluant les microstructures très fortement déformées. A ces niveaux de déformation, la description de la microstructure initialement choisie n'est plus valable.

**Aux plus fortes déformations, nous avons pu voir une sous-structure composée de cellules délimitées par des parois de dislocations qui se développent par restauration dynamique.**

Ce phénomène peut même conduire à la formation de nouveaux grains (recristallisation dynamique continue). Ces cellules semblent être des précurseurs de la germination de la recristallisation. Lorsque ces cellules deviennent des grains, la germination comme on l'entend habituellement perd son sens. La recristallisation s'opère alors par la croissance des petits grains ayant une faible énergie volumique au détriment des autres qui auront, au départ, des densités de dislocations supérieures. En ce sens, on se rapproche d'un régime de recristallisation post-dynamique. Pour ce type de microstructure, la recristallisation est beaucoup plus rapide que pour les microstructures faiblement déformées.

Ici, la description précédemment utilisée de la microstructure n'est plus valable. En effet, l'état de contrainte macroscopique du matériau est dû en majeure partie à la taille des cellules (ou grains), lesquelles contiennent une certaine densité de dislocations. La notion de densité de dislocations équivalente précédemment utilisée n'a donc plus beaucoup de sens.

**En utilisant une description adéquate de la microstructure de déformation (taille de grains très petite et une densité de dislocations inférieure à la valeur de déclenchement de la germination), nous avons pu simuler de manière correcte un traitement thermique sur cette microstructure.**

Enfin, on retrouve des microstructures intermédiaires, combinaison des deux microstructures précédentes. Ce type de microstructure présente des grains initialement présents dans la microstructure avant déformation, mais ceux-ci sont également en cours de formation d'une sous-structure en cellules de dislocations. Cette formation de la sous-structure est inhomogène car elle résulte des hétérogénéités de déformation. Pour ces microstructures, il est également difficile de conserver la notion de densité de dislocations équivalente étant donné que l'état de contrainte macroscopique peut être similaire à celui d'une microstructure moins déformée comme c'était le cas pour nos microstructures 1 et 2.

**Du point de vue de la recristallisation, une augmentation de la quantité de déformation accélère fortement la cinétique même si les densités de dislocations équivalentes dans les échantillons déformés sont proches.**

La modélisation standard de cette microstructure ne permet pas de simuler correctement un traitement thermique et nécessiterait une description mixte entre les microstructures faiblement et très fortement déformées.

## PERSPECTIVES

---

Ce travail couvre le domaine des évolutions microstructurales au cours d'un traitement thermique de manière assez globale, depuis la description des microstructures à l'état déformé jusqu'à la prédiction des microstructures de recuit par simulation numérique d'un traite-

ment thermique. Il ouvre des perspectives assez larges dans plusieurs des thèmes abordés afin d'améliorer encore la connaissance des mécanismes microstructuraux dans le tantale, de valider la mise en place du modèle en champ moyen pour obtenir des simulations prédictives et enfin de coupler le modèle à un logiciel de mise en forme basé sur la méthode des éléments finis. Ce couplage permettra notamment de simuler un traitement thermique sur une pièce entière.

Une première utilisation de la modélisation a été réalisée sur des cinétiques de recristallisation obtenues à partir de microstructures spécifiques permettant de mettre en avant l'effet du type de microstructure sur la réponse du modèle. Pour un même type de microstructure, une validation sur un matériau avec de plus petits grains ainsi qu'une méthode de détermination des paramètres du modèle plus systématique devrait rendre le jeu de paramètres plus robuste. Des tests dans d'autres configurations de sollicitations mécaniques apporteraient également une vision plus large des conditions d'application du modèle, de son caractère prédictif et des améliorations à y apporter.

A la vue des résultats obtenus, il apparaît que le point d'amélioration prioritaire du modèle est d'enrichir la description de la microstructure de déformation afin de mieux modéliser l'étape de germination, et notamment prendre en compte la sous-structure en cellules de dislocations qui se développe au cours de la déformation et qui joue un rôle majeur dans la formation des germes de recristallisation. Deux solutions peuvent être envisagées :

- Adapter la loi de germination pour qu'elle dépende de la déformation équivalente cumulée, notamment au niveau du nombre de germes et de la cinétique de germination. Cette solution n'implique pas de modifications majeures du modèle, si ce n'est l'ajout du niveau de déformation équivalent macroscopique dans la description de la microstructure initiale. Il faudrait également prendre en compte l'évolution de la topologie de la germination. Les zones où apparaissent les nouveaux grains recristallisés dépendent également du niveau de déformation.
- Modifier la modélisation de la microstructure pour inclure une description de la sous-structure avec, par exemple, une combinaison d'une distribution de taille de cellules et d'une distribution de désorientation des parois de cellules.

Ces deux propositions de modifications du modèle supposent la caractérisation expérimentale de la sous-structure, de son évolution avec les conditions thermomécaniques et de son effet sur la germination de la recristallisation. Des traitements thermiques pourraient par exemple être réalisés sur des zones bien choisies de l'oligocristal déformé afin de caractériser de manière fine les mécanismes locaux de formation des germes et de développement des grains recristallisés à l'intérieur des grains ou au niveau des joints de grains (avec la technique de traitement thermique *in situ* par exemple). Ces expériences permettraient de compléter les connaissances déjà acquises sur les mécanismes d'évolution microstructurale dans le tantale.

Dans la même optique, la loi de restauration apparaît à ce stade très importante. Dans un premier temps, des mesures complémentaires seraient à réaliser afin de valider la loi actuellement utilisée. Puis, il faudrait sûrement réfléchir à une loi plus adaptée, qui viendrait s'inscrire dans la logique de description de la sous-structure de déformation et donc de son évolution avec la température.

Un autre point qu'il serait intéressant d'approfondir est la mesure des densités de dislocations, donnée essentielle du modèle en champ moyen. Une estimation de la densité de dislocations a été proposée en réalisant une mesure de microdureté. On pourrait confronter les résultats à des mesures obtenues par d'autres techniques sur un même échantillon. La mesure de microdureté pourrait notamment venir compléter l'étude comparative actuellement menée par le GDR n°3436 « Recristallisation » sur un panel de techniques expérimentales déjà utilisées pour évaluer la densité de dislocations ou l'énergie stockée. La loi reliant dureté et densité de dislocations pourrait aussi être complétée par d'autres mesures permettant de juger des effets de la taille de grains ou des impuretés sur cette relation.

Une extension de cette approche pourrait également être tentée pour décrire, à partir d'une mesure de microdureté, la sous-structure formée lors de la déformation. Cette sous-structure pourrait, par exemple, être représentée par deux densités de dislocations.

Enfin, des améliorations restent à apporter si l'on veut établir la relation dureté-densité de dislocations équivalente à partir de la méthode de simulation de l'indentation. Dans l'annexe A5, nous avons montré qu'il était tout à fait possible de simuler l'indentation Vickers du tantale pur à vitesse d'indentation constante. La simulation réagit de la même manière que l'expérience mais les niveaux de dureté numérique sont cependant un peu faibles. L'effet du temps de maintien serait mal pris en compte à cause d'une représentation imprécise de l'écrouissage du tantale aux faibles déformations. Des efforts seraient à fournir au niveau de la loi de comportement aux faibles déformations qui pourrait influencer de manière importante l'évolution de la dureté au cours du maintien de la charge. Une meilleure description de la transition élasto-plastique devrait permettre de lever ces difficultés mais la présence du pic de contrainte ne facilite pas ce travail.





## **ANNEXES.**

## ANNEXE A1

## A1. GEOMETRIE DES EPROUVETTES UTILISEES LORS DES ESSAIS MECANIQUES

Cette annexe décrit les géométries utilisées lors des essais de compression uniaxiale et de torsion sur éprouvette pleine et récapitule les conditions thermomécaniques dans lesquelles ces essais ont été réalisés.

## A. ESSAIS DE COMPRESSION UNIAXIALE

On rappelle que les essais de compression ont été effectués lors des travaux de (Houillon 2009) mais largement réutilisés dans le cadre de cette thèse.

La géométrie des pions de compression est présentée sur la figure A1-1.

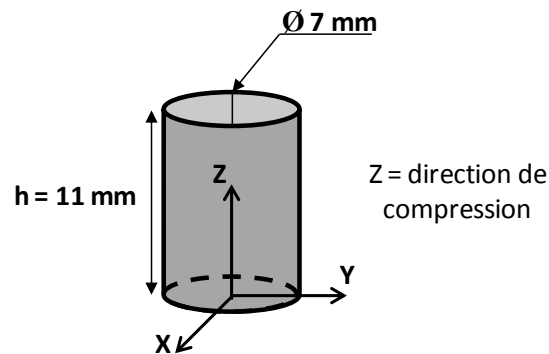


Figure A1-1. Géométrie des pions de compression

Ces essais sont menés à température ambiante jusqu'à une déformation vraie suivant l'axe de compression d'environ 0,8. Lors de ces essais, la vitesse de déplacement de la traverse est constante (vitesse de déformation variable au cours de l'essai). Une pâte au cuivre est utilisée pour diminuer le frottement entre les outils et le pion de compression. Chaque essai est reproduit cinq fois pour s'assurer de la reproductibilité.

Quatre essais sont menés à des vitesses de traverse de  $0,01 \text{ mm.s}^{-1}$ ,  $0,1 \text{ mm.s}^{-1}$ ,  $1 \text{ mm.s}^{-1}$  et  $10 \text{ mm.s}^{-1}$ , correspondant respectivement à des vitesses de déformation de l'ordre de  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$ ,  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ ,  $10^{-1} \text{ s}^{-1}$  et  $1 \text{ s}^{-1}$ .

## B. ESSAIS DE TORSION SUR EPROUVETTE PLEINE

Ces essais sont réalisés dans le but d'obtenir des microstructures déformées. Les échantillons sont ensuite traités thermiquement afin de caractériser la recristallisation. La géométrie de l'éprouvette de torsion est donnée sur la figure A1-2. Ces essais sont réalisés à température ambiante suivant les conditions regroupées dans le tableau A1-1.

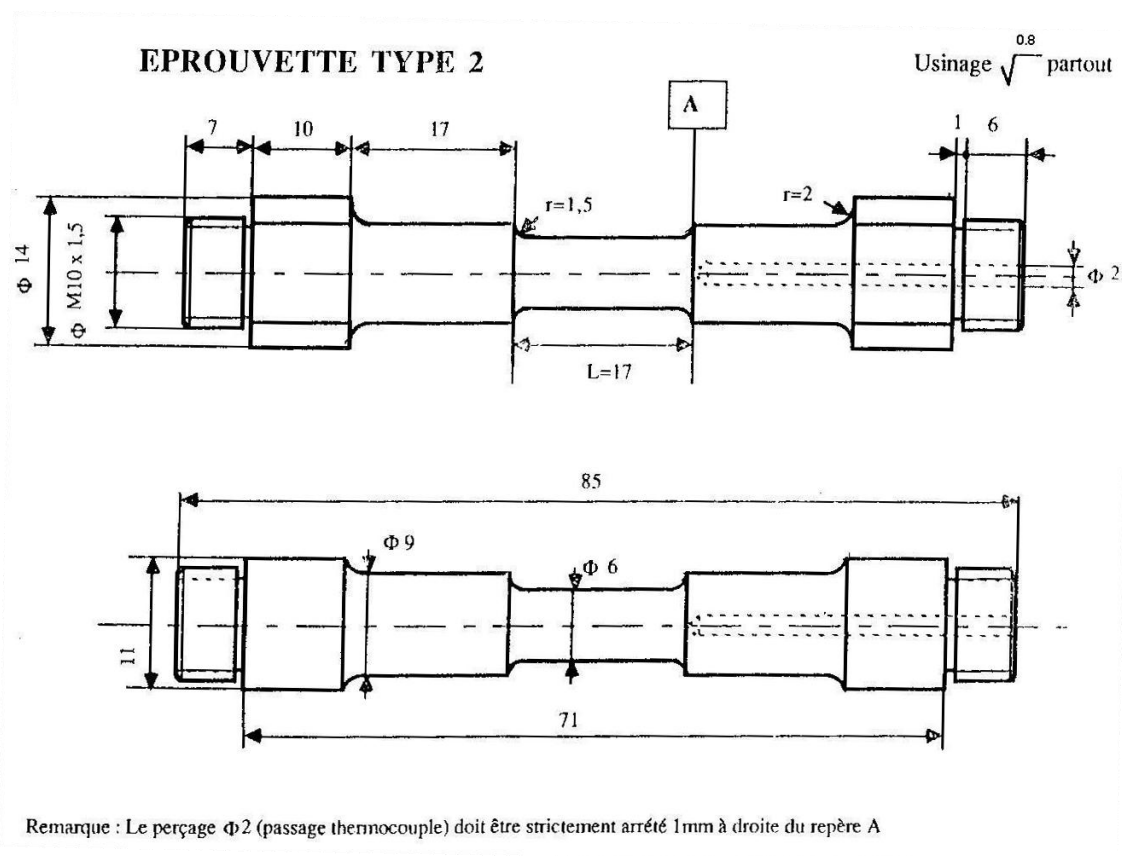


Figure A1-2. Géométrie des éprouvettes de torsion

Tableau A1-1. Conditions mécaniques de déformation des éprouvettes de torsion utilisées pour obtenir les microstructures déformées

Essai type	$\bar{\epsilon}$	$\dot{\bar{\epsilon}}$ ( $s^{-1}$ )
1	0,64	0,5
2	1,28	0,5
3	3,5	0,05

## ANNEXE A2

## A2. FICHIER MATERIAU FORGE® DU TANTALE PUR POUR LA LOI DE COMPOTEMENT BASEE SUR LA DENSITE DE DISLOCATIONS

```
{ Software= GLPre_V2.6 }
```

```
{ Supported_Software= FORGE2 FORGE3 }
```

```
{ Comments=
  Materiau: Ta
  Type_Calcul: cold forming
  Type_Mat: Tantalum
}
```

```
{ Rheological_Units= mm-MPa }
```

```
{ Rheological_Data_as_Text=
EVP
```

```
  LOIV SIG0
  LOI_TANT
  PAR RHO_DISLO          = 1
  PAR SIGMA00            = 100
  PAR SIGMA0S            = 1047
  PAR MII                = 24.5
  PAR ka0                = 1.6
  PAR ka1                = 11
  PAR delta_G_k          = 1d-19
  PAR ebp_sup_k          = 2d8
  PAR delta_G_0          = 1.28d-19
  PAR ebp_sup_0          = 2.5d5
  PAR exp_p              = 0.47
  PAR exp_q              = 1.44
  FIN LOI
```

```
LOIV INTG
```

```
  DISLO_TANT
  PAR MII                = EXIST
  PAR ka0                = EXIST
  PAR ka1                = EXIST
  PAR delta_G_k          = EXIST
  PAR ebp_sup_k          = EXIST
  PAR durete_a           = 27
  PAR durete_b           = 69
  PAR STRAIN_RATE        = EXIST
  PAR EQ_STRAIN          = EXIST
  PAR T_G_initiale       = 75
  ETA RHO_DISLO          = EXIST
  ETA DURETE_HV300       = 0
  ETA Taille_GRAIN       = 0
  ETA DUR_HV300_HP       = 0
  ETA Ka                 = 0
  FIN LOI
```

```
!Elasticity coefficients
```

```
  YoungModulus          = 186000
  PoissonCoeff           = 0.35
```

```
}
```

```
{ Thermal_Units= SI }
```

```
{ Thermal_Data_as_Text=
```

```
!Thermal coefficients
```

```
  Specific Heat          = 153
  Density                 = 16650
  Conductivity            = 54.4
  Epsilon                 = 0.49 !Emissivity
```

```
}
```

## ANNEXE A3

### A3. PROTOCOLE DE PREPARATION DES ECHANTILLONS DE TANTALE PUR POUR UNE OBSERVATION EN EBSD

**Recommandations générales:**

- Utiliser autant que possible des papiers abrasifs neufs, ou n'ayant servi qu'au polissage de tantale
- Ne pas utiliser d'eau du robinet mais de l'eau distillée ou au moins filtrée
- Vérifier l'état de la surface polie entre chaque papier
- Polir longtemps (> 5 min) sur chaque papier abrasif, appui en automatique ~0,5 daN (équivalent en manuel : appui modéré)

**A. PROTOCOLE AVEC ACIDE FLUORHYDRIQUE (HF) (HOUILLOON 2009) :**

1. Polissage mécanique progressif jusqu'à un papier 4000 grains /mm<sup>2</sup> lubrifié au savon liquide, environ deux minutes par papier.
2. Polisseuse vibrante avec alumine 0,02 µm sur drap Buehler Microcloth pendant 15 heures.
3. OPS sur polisseuse classique pendant 2' 30''.
4. Attaque de quelques minutes au coton imbibé de  $\frac{3}{4}$  HNO<sub>3</sub> +  $\frac{1}{4}$  HF

**B. PROTOCOLE SANS ACIDE FLUORHYDRIQUE (HF):**

1. Papier 1200 + eau + vitesse de rotation ~350 trs/min
2. Papier 2400 + eau + vitesse de rotation ~350 trs/min
3. Papier 4000 + eau + vitesse de rotation ~350 trs/min
4. Solution diamantée 1 µm + vitesse de rotation ~150 trs/min
5. OPS >15 min en plusieurs fois (jusqu'à grains visibles en microscopie optique) + vitesse de rotation ~150 trs/min

Le protocole (b) a été établi durant ces travaux de thèse. Ce nouveau protocole présente l'avantage de ne plus nécessiter d'attaque chimique à l'acide fluorhydrique, méthode qui apparaissait jusqu'alors comme la seule solution pour révéler la microstructure et réaliser des analyses EBSD sur le tantale. Par rapport au protocole (a), il est également beaucoup plus rapide. Il est à signaler que l'utilisation d'une polisseuse automatique augmente considérablement le pourcentage de « bon polissage » en rendant celui-ci moins aléatoire (surtout au niveau de la force d'appui).

## ANNEXE A4

## A4. COMPLEMENT DE L'ETUDE EXPERIMENTALE DE MISE EN ŒUVRE DE L'INDENTATION VICKERS SUR TANTALE PUR RECRISTALLISE

L'essai de dureté Vickers est piloté par le temps de maintien de la charge, mais également par la valeur de la charge et la vitesse à laquelle l'indentation est réalisée. Nous avons vu que le temps de maintien a une influence significative sur la dureté Vickers du tantale pur recristallisé. Dans cette annexe, nous détaillons l'effet de la charge et de la vitesse d'indentation.

### A. INFLUENCE DE LA CHARGE

Pour un temps de maintien donné, la dureté Vickers du tantale pur diminue lorsque la charge augmente. La figure A4-1 montre l'exemple de charges allant de 50 gf à 1 kgf pour deux temps de maintien, 5 et 30 secondes. Pour le temps de maintien le plus court, la dureté Vickers passe de 90 HV<sub>0,05</sub> /5 à 83 HV<sub>1</sub> /5. Lorsque l'on augmente le temps de maintien à 30 s pour les plus fortes charges, la valeur de dureté ne dépend quasiment plus de la charge. Pour la charge de 50 gf, un essai avec un temps de maintien de 99 s a également été réalisé et donne une dureté de 79 HV<sub>0,05</sub> /99. De la même manière que pour le temps de maintien, on peut attribuer cette diminution de la dureté avec la charge à la viscosité du tantale pur à température ambiante. Pour une charge donnée, un temps de maintien suffisamment long permet d'atteindre un palier de dureté et ce palier ne semble pas dépendre de la charge.

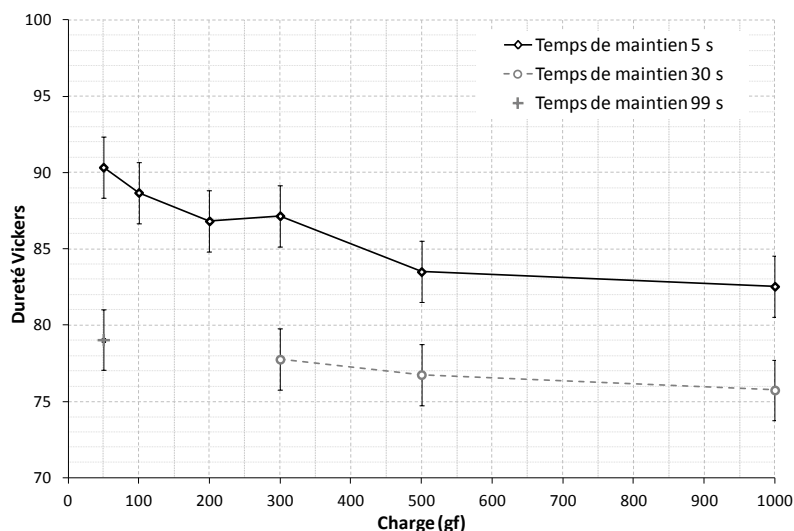


Figure A4-1. Influence de la charge sur la microdureté du tantale pur recristallisé (pour différentes durées de maintien de la charge)

### B. INFLUENCE DE LA VITESSE D'INDENTATION

Pour évaluer l'influence de la vitesse d'indentation pendant la mise en charge, nous avons utilisé une charge de 25 gf permettant de piloter l'indenteur en vitesse. En effet, le microduromètre utilisé a deux cinématiques d'indentation suivant la charge employée. On sépare

donc la cinématique des charges strictement supérieures à 25 gf (cf partie 2, section II.1.b) à celle des charges inférieures ou égales à 25 gf (figure A4-2). Les faibles charges sont contrôlées par électromagnétisme. Ici, la vitesse est donc imposée (1, 3, 10 ou 33  $\mu\text{m.s}^{-1}$ ). La pointe Vickers descend jusqu'à la surface de l'échantillon puis l'indentation commence à vitesse contrôlée. Un capteur d'effort vient relever l'augmentation de l'effort jusqu'à atteindre la charge spécifiée pour l'essai. A partir de ce moment-là, on définit également un temps de maintien  $t$  qui est au minimum de 5 s et d'environ 10 s selon la norme.

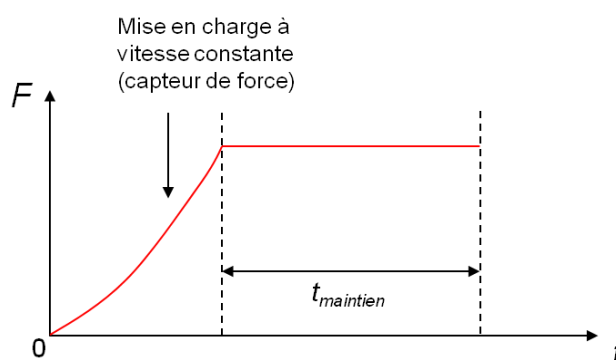


Figure A4-2. Evolution de la charge au cours d'une indentation Vickers réalisée à vitesse d'indentation constante ( $F \leq 25 \text{ gf}$ )

Les deux vitesses extrêmes ont été choisies, 1  $\mu\text{m.s}^{-1}$  et 33  $\mu\text{m.s}^{-1}$ . La figure A4-3 montre l'évolution de la dureté Vickers pour une charge de 25 gf en fonction du temps de maintien et ceci pour les deux vitesses de pénétration. On constate tout d'abord que l'augmentation de la vitesse d'indentation tend à augmenter la dureté pour un temps de maintien de 5 s (là encore des effets de viscosité peuvent jouer). Puis, en augmentant le temps de maintien, la dureté tend vers une même valeur pour les deux vitesses d'indentation (autour de 77 HV0,025). La vitesse d'indentation va influencer la cinétique pour arriver au palier de dureté, qui apparaît être le même quelque soit la vitesse d'indentation et la charge.

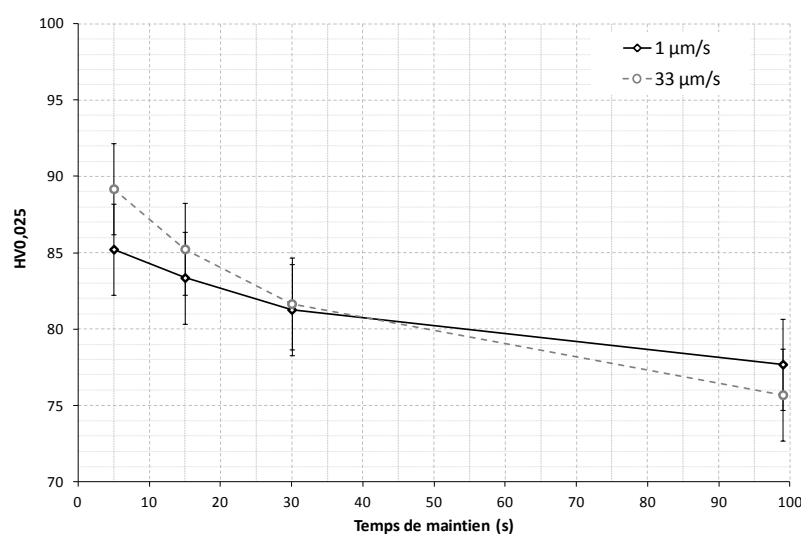


Figure A4-3. Influence de la vitesse d'indentation sur la microdureté Vickers (25 gf)



## ANNEXE A5

## A5. SIMULATION DE L'ESSAI D'INDENTATION VICKERS

La stratégie d'identification de la relation entre dureté Vickers et densité de dislocations équivalente, telle qu'elle a été établie dans les travaux précédents, implique la simulation numérique de l'indentation. Avant d'établir cette relation à partir de la méthode définie dans la partie 2, section II.2, nous avons cherché à poursuivre cette stratégie, en ajoutant à la simulation numérique de l'indentation Vickers la prise en compte du temps de maintien et de la cinématique réelle de l'indenteur. Dans un premier temps, nous allons définir la simulation de l'indentation Vickers avec le logiciel Forge 2011®. Puis, nous estimerons quels effets ont les paramètres de la simulation sur le résultat de l'indentation (étude de sensibilité) dans le cas plus simple de l'indentation à vitesse constante. Enfin, nous verrons s'il est possible de bien représenter l'indentation Vickers réelle avec une charge de 300 gf et ainsi de déterminer la relation dureté-densité de dislocations équivalente.

## A. DEFINITION DE LA SIMULATION DE L'INDENTATION VICKERS

La simulation de la microindentation Vickers fait appel à trois objets (figure A5-1) :

- deux outils non déformables que sont l'indenteur et le plan d'appui,
- un objet déformable qu'est l'échantillon, cylindre de hauteur  $h_d$  et de rayon  $r_d$ .

Etant donné la symétrie du problème et dans un souci d'optimisation du nombre d'éléments finis et donc du temps de calcul, seul un huitième de la géométrie sera modélisé.

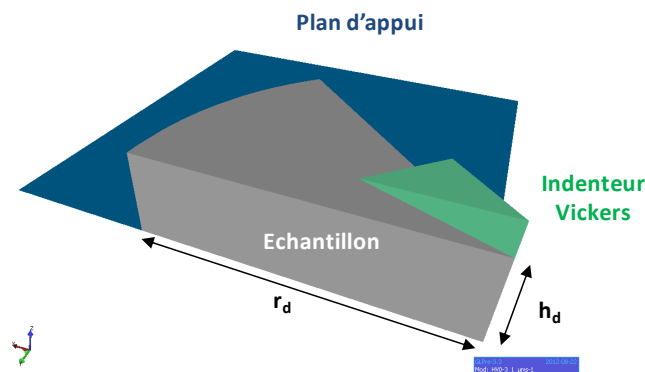


Figure A5-1. Objets de la simulation éléments finis de l'indentation Vickers

Pour une indentation du tantale pur recristallisé avec une charge de 300 gf, la diagonale de l'empreinte est d'environ 80  $\mu\text{m}$  en moyenne. La profondeur de cette empreinte est alors d'environ 11  $\mu\text{m}$ , et on choisit de fixer la hauteur de l'échantillon numérique à 10 fois cette hauteur, soit  $h_d = 110 \mu\text{m}$ .

Le maillage de l'échantillon est constitué de plusieurs boîtes sphériques imbriquées permettant de raffiner le maillage dans la zone déformée par l'indenteur tout en assurant une augmentation progressive de cette taille jusqu'au bord de l'échantillon (figure A5-2). Lorsque l'on parlera par la suite de la taille de maille de l'échantillon, on fera uniquement référence à la

taille des éléments les plus petits, dans la zone sous l'indenteur. Le comportement mécanique de l'échantillon est décrit par la loi définie dans la partie 2 de ce manuscrit (équation 2.4 et 2.10) et basée sur la densité de dislocations équivalente. Le fichier matériau utilisé dans Forge est donné en annexe A2.

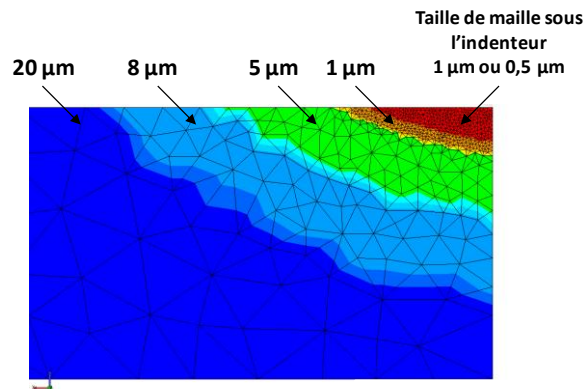


Figure A5-2. Maillage éléments finis de l'échantillon à indenter

Dans un premier temps, l'indenteur sera piloté en vitesse à  $1 \mu\text{m.s}^{-1}$  et simulera une charge de 300 gf. Cette configuration est la plus simple pour tester les capacités du logiciel et de la loi de comportement à bien représenter l'indentation Vickers. Une fois la charge de 300 gf atteinte à vitesse constante, Forge 2011® permet de maintenir cet effort pendant un temps donné. On peut ainsi simuler le temps de maintien. Cette cinématique représente la cinématique expérimentale illustrée en annexe A4 sur la figure A4-2. Une fois l'indentation réalisée, la longueur de la demi-diagonale est mesurée entre la pointe de l'indenteur et le dernier nœud de l'échantillon en contact avec la pyramide Vickers (figure A5-3). La taille de maille sur la surface de l'échantillon va donc jouer un rôle important sur la précision de la mesure de la diagonale.

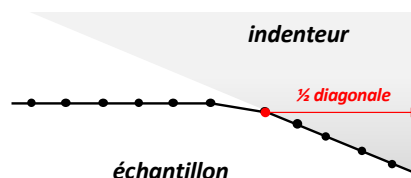


Figure A5-3. Méthode de mesure de la demi-diagonale de l'empreinte laissée par l'indenteur Vickers

Lors de ces simulations, on ne prend pas en compte le déchargement élastique qui apparaît, aux vues des tests numériques effectués, comme négligeable dans le cas de l'indentation du tantale.

#### B. PARAMETRES INFLUENÇANT L'INDENTATION ET LA DURETE NUMERIQUE

Les quatre paramètres, autres que la loi de comportement, susceptibles d'avoir une influence sur la simulation numérique de l'indentation sont :

- Le rayon de l'échantillon  $r_d$ ,
- Le frottement entre l'indenteur et le tantale,
- La taille de maille de l'échantillon sous l'indenteur,
- Le pas de déformation maximal lors d'un incrément.

Pour évaluer l'influence de ces paramètres, on fait varier chacun d'entre eux en conservant les autres paramètres constants. Les résultats sont ensuite comparés en termes d'effort, de profondeur de pénétration et de dureté en fonction du temps de maintien.

La taille du domaine que l'on va indenter est évidemment un paramètre important puisque l'on souhaite représenter un milieu semi infini. Pour évaluer l'influence du rayon de l'échantillon, trois rayons correspondant à 2,5 fois, 5 fois et 10 fois la demi diagonale ( $40\text{ }\mu\text{m}$  environ pour  $87\text{ HV}_{0,3/5}$ ), sont testés. La figure A5-4 montre les résultats obtenus pour ces trois rayons et il est clair que le plus petit domaine influence grandement le résultat au niveau de la profondeur de pénétration et donc de la dureté Vickers. Les domaines 5 et 10 fois plus grand que la demi-diagonale donnent les mêmes résultats (les variations observées étant dues à des maillages non strictement identiques). Par la suite on choisira un domaine 10 fois plus grand que la demi-diagonale de l'empreinte, qui est une valeur classique pour s'affranchir des effets de bord.

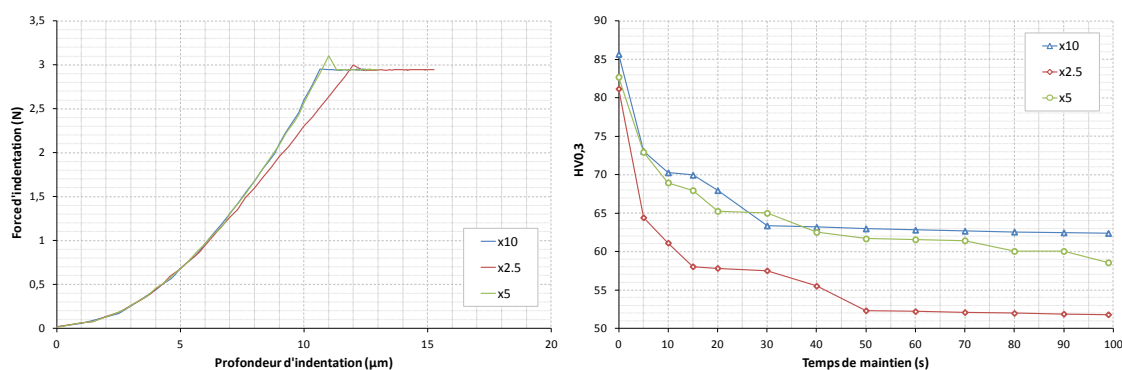


Figure A5-4. Influence de la taille de l'échantillon sur l'indentation numérique

#### Remarque

Les « sauts » de dureté observés sur la courbe donnant la dureté en fonction du temps de maintien sont dus à la méthode de mesure de la diagonale et à la taille du maillage dans la zone du dernier nœud de contact entre l'indenteur et l'échantillon. En effet, le passage d'un nœud à l'autre entraîne une brusque variation de la longueur de la diagonale (figure A5-5).

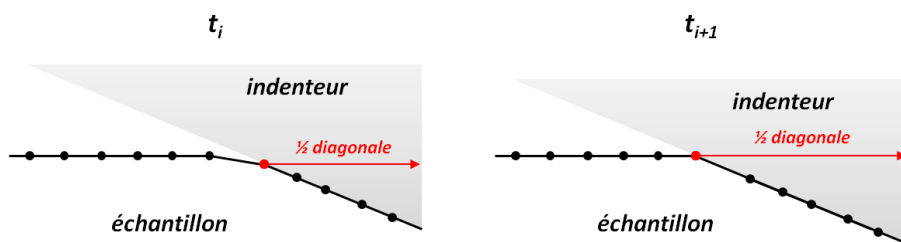


Figure A5-5. Passage d'un nœud à l'autre dans la zone de fin de contact entre l'indenteur et l'échantillon

Le coefficient de frottement d'une loi de type Coulomb (cf. équation A5.1) utilisé dans les simulations de l'indentation Vickers est classiquement choisi à 0,16 (Antunes et al. 2006) (entre le diamant et la plupart des matériaux). Cependant, le tantale est connu pour « coller » énormément aux outils, notamment en usinage, ce coefficient de 0,16 apparaît donc faible pour notre cas. Le coefficient de frottement a donc été modifié dans les simulations d'indentation, dans lesquelles une loi de type Tresca (cf. partie 2 équation 2.15) a été utilisée.

Trois valeurs représentatives de trois frottements différents ont été testées: 0,16 (faible), 0,5 (moyen) et 0,95 (fort quasi-collant). A la vue des résultats obtenus en simulation (figure A5-6), le frottement ne semble pas être un paramètre prépondérant dans l'indentation Vickers. N'ayant pas d'information expérimentale sur le frottement entre le tantale pur et la pointe Vickers en diamant, et compte tenu du fait que le tantale soit un matériau « collant », nous considérerons par la suite un coefficient de frottement de Tresca de 0,5.

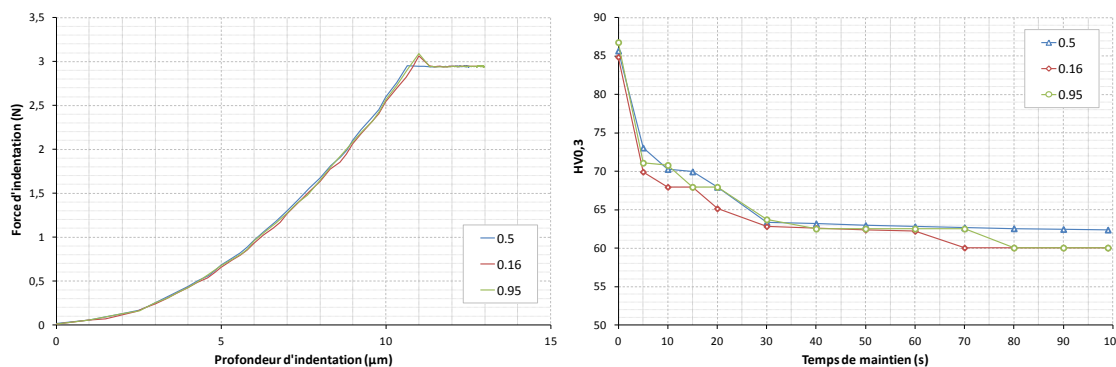


Figure A5-6. Effet du frottement sur l'indentation Vickers numérique

**Remarque – Loi de frottement de Coulomb**

$$\tau_c = \mu p_c$$

Equation A5.1

Avec  $\tau_c$  la contrainte cisaillement critique pour laquelle on déclenche le glissement relatif d'un corps par rapport à l'autre,  $\mu$  le coefficient de frottement et  $p_c$  la pression de contact.

Les derniers paramètres que sont la taille de maille de l'échantillon et le pas de déformation maximale sont tous deux liés à la précision du calcul et des résultats. Deux tailles de mailles sous l'indenteur (1  $\mu\text{m}$  et 0,5  $\mu\text{m}$ ) ont été choisies pour que le nombre d'éléments dans la diagonale soit suffisamment important. La taille de maille est un compromis entre le temps de calcul, la précision du calcul et la précision de la mesure de la diagonale. La taille de 1  $\mu\text{m}$  permet d'avoir un temps de calcul raisonnable et d'obtenir des résultats satisfaisants. Malgré une bonne description de l'effort en fonction de la profondeur de pénétration, on constate tout de même que la dureté évolue par « palier » (cf zoom figure A5-7). Cette évolution est due à la précision de la mesure de la diagonale et aux sauts d'un nœud à l'autre (figure A5-5). Lorsque la taille de maille sous l'indenteur est de 0,5  $\mu\text{m}$ , la dureté évolue de manière plus progressive car on augmente la précision de la mesure de la diagonale et on amoindrit l'effet des sauts de nœuds. Bien qu'une diminution de la taille de maille soit favorable à une évolution de dureté plus progressive, elle présente le fort inconvénient d'augmenter significativement le temps de calcul. L'effort étant décrit de la même manière pour les deux tailles de mailles, une taille de maille de 1  $\mu\text{m}$  apparaît suffisante pour décrire l'indentation Vickers avec une charge de 300 gf.

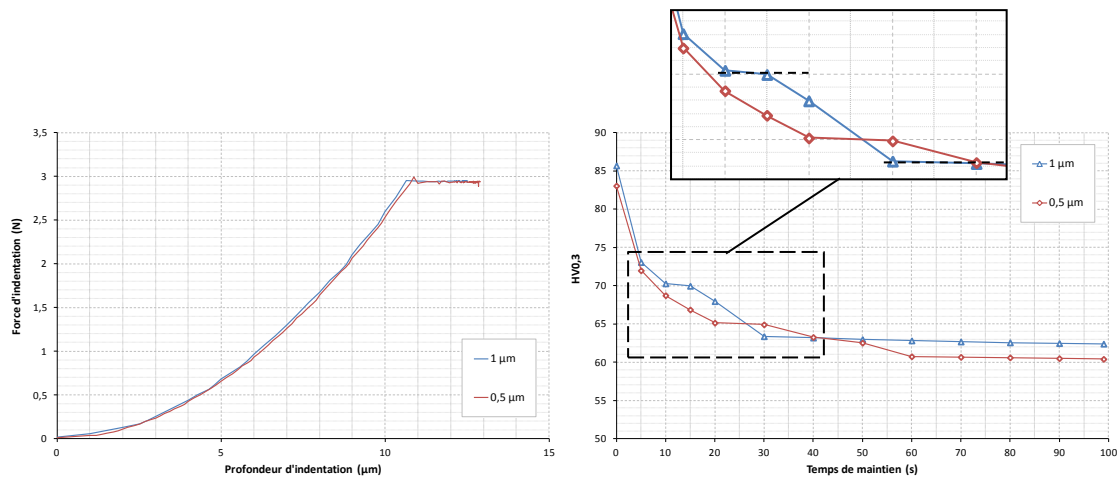


Figure A5-7. Effet de la taille de maille de l'échantillon (sous l'indenteur) sur l'indentation numérique

Le pas de déformation maximal est défini comme la déformation équivalente maximale admissible sur l'échantillon en un incrément de calcul. Par défaut dans Forge 2011®, ce paramètre est fixé à 0,01. Il permet d'agir indirectement sur le pas de temps et d'avoir au cours d'une même simulation un pas de temps variable. Ceci s'avère très utile dans le cas de l'indentation pour laquelle il y a deux régimes bien distincts et nécessitant deux pas de temps différents. Le premier régime est la pénétration de l'indenteur dans le matériau jusqu'à atteindre la force spécifiée. Ce régime présente des incréments de déformation par unité de temps qui sont importants comparés au régime de maintien qui le suit. Le pas de temps va donc être plus faible pour le premier régime. Le pas de temps initial de la simulation peut être estimé à partir de la formule suivante (Transvalor 2011) :

$$\Delta t = \frac{2}{\sqrt{3}} \cdot \frac{H_0}{V_0} \Delta \varepsilon \quad \text{Equation A5.2}$$

Avec  $\Delta t$  le pas de temps (en s),  $H_0$  la hauteur initiale de l'outil maître (ici l'indenteur),  $V_0$  la vitesse initiale de l'outil maître et  $\Delta \varepsilon$  le pas de déformation. Le pas de déformation maximal ne modifie pas le résultat de l'indentation dans la gamme de pas de déformation maximale testée, i.e. 0,01-0,001-0,0001 (figure A5-8). Les différences observées au niveau de la dureté sont principalement dues à un maillage qui n'est pas strictement identique entre la simulation réalisée avec un pas de 0,01 et celles faites avec les pas de 0,001 et 0,0001. On peut d'ailleurs noter que pour ces deux dernières simulations les résultats sont identiques, à maillage identique.

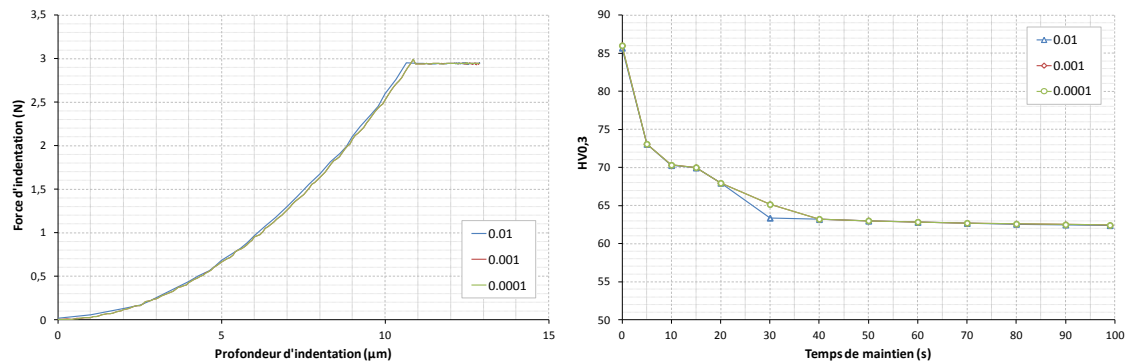


Figure A5-8. Effet du pas de déformation maximal sur l'indentation numérique

La taille du maillage et le pas de déformation maximal ne peuvent pas être fixés de manière définitive pour n'importe quelle simulation d'indentation. Leurs valeurs devront bien sûr être adaptées en fonction du problème (matériau, charge, géométrie, vitesse d'indentation, précision souhaitée). Dans le cas d'une indentation à  $1 \mu\text{m.s}^{-1}$  avec une charge de 300 gf, un maillage de  $1 \mu\text{m}$  sous l'indenteur et un pas de déformation maximal par défaut (0,01) sont suffisants pour bien représenter l'indentation du tantale.

Dans la littérature, une étude prend en compte le défaut de pointe de l'indenteur (Antunes et al. 2007) mais dans le contexte de la nanoindentation. Ces défauts de pointe étant de l'ordre du dixième de micromètre, il est difficile de les modéliser en microdureté où les empreintes ont des diagonales de plusieurs dizaines de micromètres. L'échelle de la microdureté par rapport à celle du défaut laisse penser que celui-ci devrait avoir peu d'impact sur le résultat. Nous ne le prendrons donc pas en compte et considérerons une pointe parfaite.

### C. ANALYSE DE L'INDENTATION NUMERIQUE ET COMPARAISON AVEC UN ESSAI D'INDENTATION INSTRUMENTE

Une fois la simulation de l'indentation bien définie et l'effet des différents paramètres influents évalué, nous pouvons analyser plus en détail les résultats de l'indentation numérique et déterminer si celle-ci permet de bien représenter l'indentation expérimentale.

Les données expérimentales acquises avec le microduromètre Buehler permettent uniquement de connaître la dureté après un temps de maintien donné. De plus, pour une charge de 300 gf, l'indentation ne se fait pas à vitesse constante, cas que l'on souhaite utiliser pour valider la simulation dans un premier temps. Nous avons donc utilisé une machine de microindentation instrumentée réalisée au CEMEF. Cette machine permet de relever la force et la profondeur de pénétration au cours de l'indentation mais ne permet pas le maintien sous charge constante. Un essai instrumenté a donc été réalisé sur un échantillon de tantale pur recristallisé pour une charge de 300 gf (2,94 N) à une vitesse de  $1 \mu\text{m.s}^{-1}$ .

On peut ainsi comparer strictement les résultats obtenus numériquement avec ceux obtenus avec cette machine instrumentée (figure A5-9). Sur cette figure, on montre que les résultats de la simulation numérique sont en très bon accord avec les données expérimentales recueillies dans la phase d'indentation à vitesse constante. La courbe effort-déplacement est très bien reproduite numériquement et la dureté résultante est ainsi quasiment identique (90 HV0,3 / 0 expérimental contre 86 HV0,3 / 0 numérique). L'erreur commise sur la dureté est tout à fait acceptable étant donné les différences qui peuvent exister entre les méthodes de mesure des diagonales numériques et expérimentales.

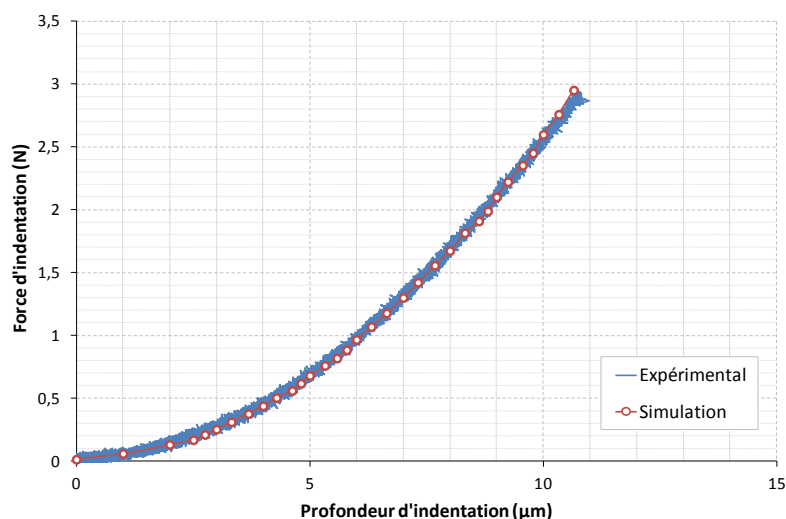


Figure A5-9. Comparaison des résultats obtenus par indentation instrumentée et indentation numérique (300 gf,  $1 \mu\text{m.s}^{-1}$ )

Précédemment dans l'annexe A4, nous avons pu constater expérimentalement (mesures sur le microduromètre) que, pour une charge donnée, la dureté sur le palier ne dépend pas de la vitesse d'indentation. Ainsi, que la mise en charge soit quasi instantanée ou à une vitesse constante de  $1 \mu\text{m.s}^{-1}$ , la dureté Vickers tend vers 77 HV0,3 lorsque la durée du maintien est suffisante. La dureté obtenue numériquement au bout de 30 s de maintien, 63 HV0,3 /30, apparaît donc comme trop faible. En réalisant une indentation numérique à  $100 \mu\text{m.s}^{-1}$ , on retrouve le fait que la dureté tend vers une valeur unique qui ne dépend pas de la charge d'indentation (figure A5-10). On remarque sur cette figure que le principal effet de la vitesse porte sur la dureté pour un temps de maintien nul : la dureté Vickers passe de 86 HV0,3 /0 à 108 HV0,3 /0 mais au bout de 5 secondes, les niveaux de dureté sont similaires. En augmentant le temps de maintien, on retrouve un palier (quasiment) indépendant de la vitesse d'indentation. Malheureusement, un essai instrumenté à cette vitesse de  $100 \mu\text{m.s}^{-1}$  est impossible à réaliser dans l'état actuel de la machine, l'asservissement ne permettant pas d'atteindre l'effort de 2,94 N sans dépassement.

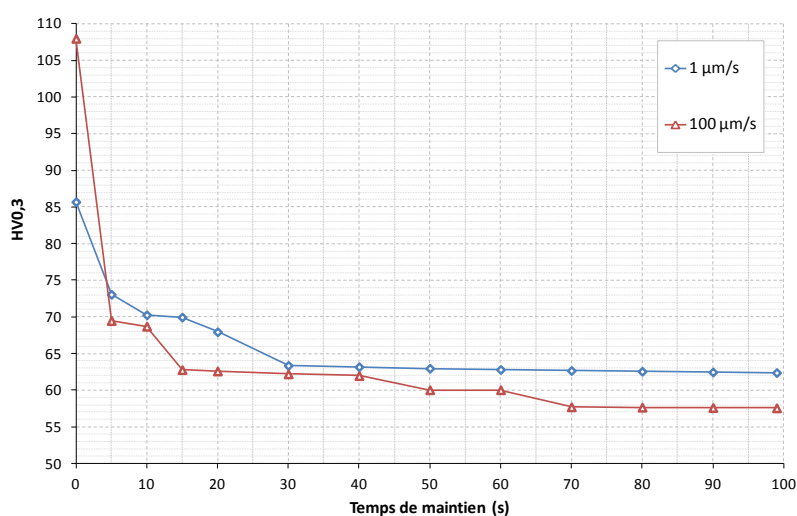
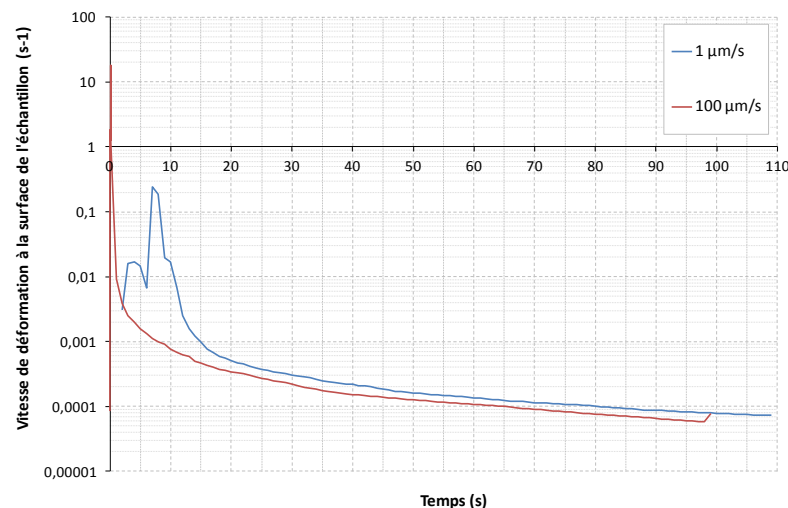


Figure A5-10. Effet de la vitesse sur l'indentation numérique

La différence de dureté observée à temps de maintien nul et pour deux vitesses différentes peut être attribuée à la viscosité du tantale à température ambiante. On retrouve d'ailleurs cette sensibilité au niveau expérimental, pour les faibles temps de maintien (annexe A4, figure A4-3). Pour évaluer la vitesse de déformation lors de l'essai d'indentation, nous avons placé un capteur numérique sur un nœud du maillage situé sur la surface de l'échantillon qui voit passer le front de déformation plastique. Les vitesses de déformation maximales lors de l'indentation sont très différentes entre les deux essais (figure A5-11). Elle atteint  $0,2 \text{ s}^{-1}$  au niveau du front de déformation plastique à la surface de l'échantillon dans le cas d'une indentation à  $1 \text{ }\mu\text{m.s}^{-1}$  et plus de  $18 \text{ s}^{-1}$  dans le cas d'une indentation à  $100 \text{ }\mu\text{m.s}^{-1}$ . Dans la phase de maintien, la vitesse de déformation sous l'indenteur reste non nulle et identique quelle que soit la vitesse d'indentation initiale. Cette vitesse est de l'ordre de  $0,0001 \text{ s}^{-1}$ . L'essai d'indentation explore ainsi toute la gamme de vitesses de déformation sur laquelle est définie la loi de comportement. Les vitesses minimales rencontrées lors de l'indentation peuvent même sortir de cet intervalle de définition, ce qui peut être préjudiciable à une modélisation qui se veut très précise.



**Figure A5-11. Vitesse de déformation locale d'un point de la surface l'échantillon voyant passer le front de déformation plastique lors de l'indentation numérique pour deux vitesses d'indentation**

Enfin, on vérifie numériquement que le palier de dureté ne dépend pas de la charge, comme observé expérimentalement (figure A5-12). On retrouve également qu'une diminution de la charge entraîne une augmentation de la dureté aux très faibles temps de maintien.



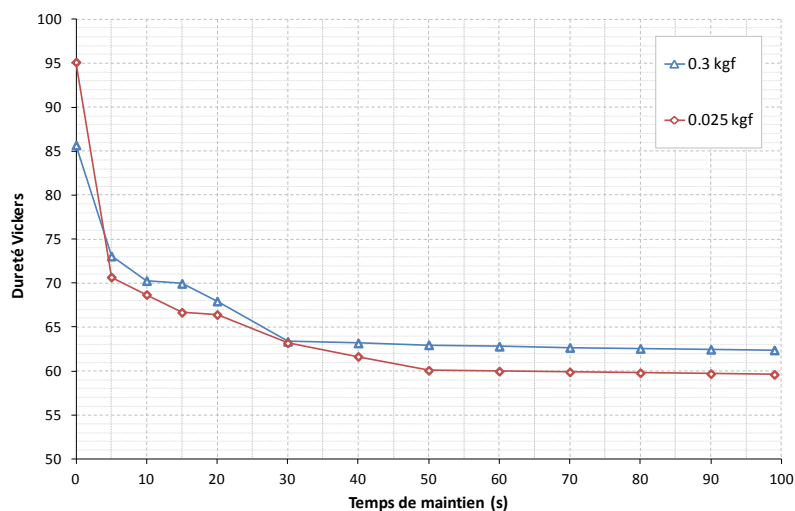


Figure A5-12. Effet de la charge sur l'indentation numérique à 1  $\mu\text{m.s}^{-1}$

Les simulations réalisées à vitesse d'indentation constante ont permis de déterminer que la simulation numérique de l'indentation était correcte dans une phase d'indentation à vitesse constante. Elles ne permettent cependant pas de bien représenter la phase de maintien, la chute de dureté étant trop rapide et surestimée. Dans ce cas, la loi de comportement utilisée serait à mettre en cause : la diminution trop rapide de dureté, et vers des valeurs trop faibles, au cours du maintien, laisse penser que la transition élasto-plastique est modélisée avec un écrouissage trop faible. La loi de comportement a en effet été calibrée à partir de la valeur de limite élastique (avec des incertitudes liées au « crochet » observé expérimentalement dans cette zone (partie 2, section I.2.b)), et de l'évolution globale de l'écrouissage aux grandes déformations. Il se peut que l'écrouissage du matériau recristallisé soit plus important aux très faibles déformations, pour ensuite évoluer plus lentement. Passée cette zone des très faibles déformations, la loi de comportement identifiée devrait être plus fiable, ce qui veut dire que des essais de microdureté réalisés sur des matériaux écrouis devraient être en bien meilleur accord avec les simulations, pour autant que l'on ait identifié la valeur initiale de densité de dislocations à prendre en compte dans la simulation.

#### D. SIMULATION DE L'ESSAI D'INDENTATION VICKERS A EFFORT CONSTANT

Cependant, les simulations à vitesse constante ne sont pas représentatives de l'essai d'indentation réel pour une charge de 300 gf, lequel est effectué à effort constant. Nous avons donc modifié la simulation numérique de l'indentation pour se rapprocher de la cinématique réelle.

La première étape consiste à introduire dans la simulation un outil fictif qui fera office d'outil maître, outil nécessaire à la définition d'une simulation dans Forge 2011®. Cet outil va permettre de définir le temps de la simulation qui correspondra donc au temps de maintien défini dans la norme. Ensuite, la vitesse de l'indenteur n'est plus imposée. On lui associe une masse 300 g et on vient le positionner directement en contact avec la surface de l'échantillon. Le pas de temps a été ici fixé à  $10^{-6}$  s car, lors de cette simulation, la mise en charge est quasi instantanée et se fait en quelques millièmes de seconde. Cela entraîne des vitesses de déplacement de l'indenteur très importantes (figure A5-13).

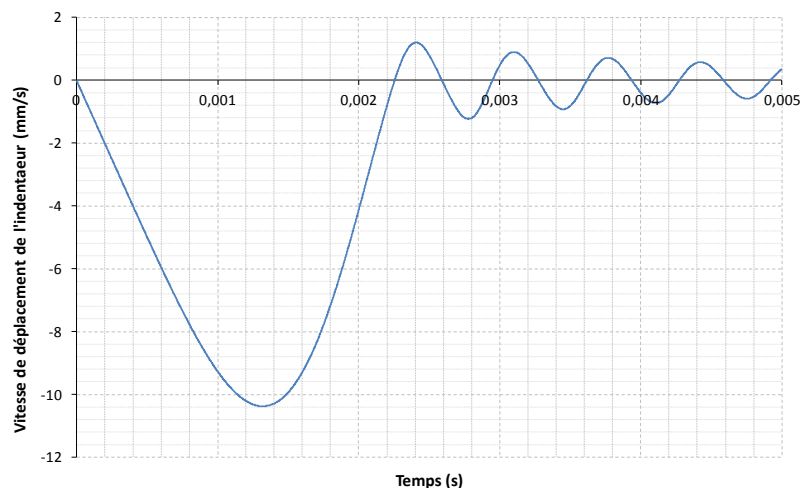


Figure A5-13. Vitesse de déplacement de l'indenteur lors d'une simulation à effort imposé

La principale conséquence de cette vitesse élevée est le dépassement de l'effort de consigne de manière assez importante (figure A5-14). En effet, le dépassement de l'effort revient à simuler une indentation avec une charge 2,5 fois plus importante. La taille de l'empreinte est en conséquence agrandie et ne correspond absolument pas à une empreinte pour une charge de 300 gf. De plus, pendant la phase de maintien, l'effort est très instable (figure A5-14). Cela laisse penser que la boucle de rétroaction mise en place dans le modèle éléments finis entre la vitesse de l'indenteur et la force résultante n'est pas bien calibrée (corrections trop importantes sur les vitesses).

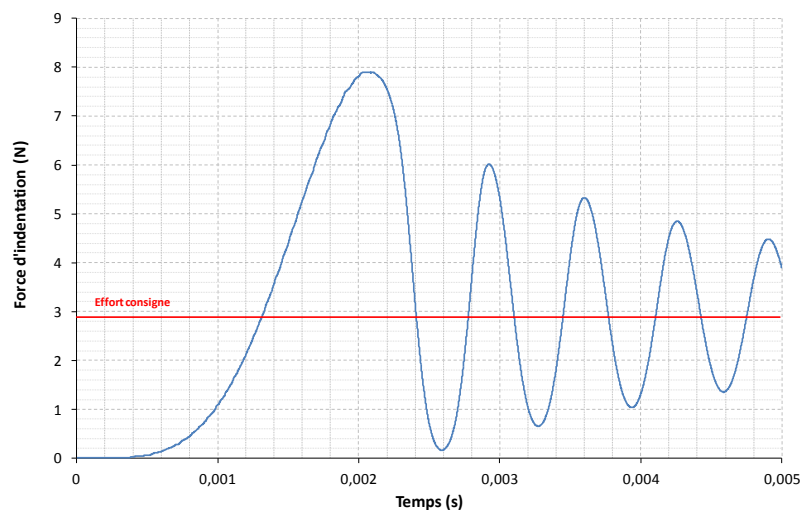


Figure A5-14. Effort numérique résultant sur l'indenteur lors d'une simulation à effort imposé

Cette simulation de l'indentation Vickers à effort imposé ne donne pas de résultats satisfaisants dans l'état actuel des choses. Avec une vitesse de 1 à 10  $\text{mm.s}^{-1}$ , les vitesses de déformations maximales sont plus importantes que dans les simulations à vitesse constante (environ  $1000 \text{ s}^{-1}$ ) et on se trouve dans un régime dynamique. Même une diminution importante du pas de temps ne permet pas d'éviter le comportement oscillatoire de l'indenteur.

Nous avons pu mettre en évidence que la dureté Vickers est fortement dépendante du temps de maintien pour le tantale : plus le temps de maintien augmente, et plus la dureté diminue, jusqu'à atteindre un palier de dureté. Ce palier est atteint à des temps de maintien différents suivant l'effort et la vitesse d'indentation, lorsque celle-ci est pilotable. Cependant, il apparaît que le palier dépend uniquement de l'échantillon indenté.

Nous avons également montré qu'il était tout à fait possible de simuler l'indentation Vickers du tantale pur à vitesse d'indentation constante. La simulation réagit de la même manière que l'expérience mais les niveaux de dureté numérique sont cependant un peu faibles. L'effet du temps de maintien serait mal pris en compte à cause d'une représentation imprécise de l'écrouissage du tantale aux faibles déformations. De plus, à l'heure actuelle, il n'est pas possible de simuler une indentation à effort constant avec le logiciel Forge 2011®, qui correspondrait à la cinématique réelle d'une mesure de microdureté classique.

Des améliorations restent à apporter si l'on veut établir la relation dureté-densité de dislocations équivalente par cette méthode de simulation de l'indentation. Des efforts sont à fournir au niveau de la simulation de l'indentation à effort constant mais également au niveau de la loi de comportement aux faibles déformations qui pourrait influencer de manière importante l'évolution de la dureté au cours du maintien de la charge.

## ANNEXE A6

## A6. ANALYSE QUANTITATIVE DES DESORIENTATIONS INTRAGRANULAIRES A PARTIR DES DONNEES EBSD

Les désorientations intragranulaires sont quantifiées grâce au « Kernel Average Misorientation » (KAM), grandeur définie et calculée dans le logiciel TSL OIM Analysis. Pour chaque pixel de la cartographie EBSD, on affecte donc une valeur représentative des rotations locales du réseau cristallin.

Le KAM représente l'angle de désorientation moyen entre le pixel considéré et ses voisins situés à une certaine distance (équation A6-1), définie en nombre de voisins (figure A6-1). L'objectif étant de caractériser les désorientations intragranulaires, les angles de désorientation supérieurs à l'angle limite de définition d'un joint de grains  $\theta_{JDG}$  sont exclus du calcul.

$$KAM = \bar{\theta} = \frac{1}{N} \sum_{\substack{i=1 \\ \theta_i \leq \theta_{JDG}}}^N \theta_i \quad \text{Equation A6.1}$$

Avec  $N$  le nombre de pixel voisins pour lesquels  $\theta_i \leq \theta_{JDG}$ ,  $\theta_i$  l'angle de désorientation entre le pixel  $i$  du voisinage et le pixel central.

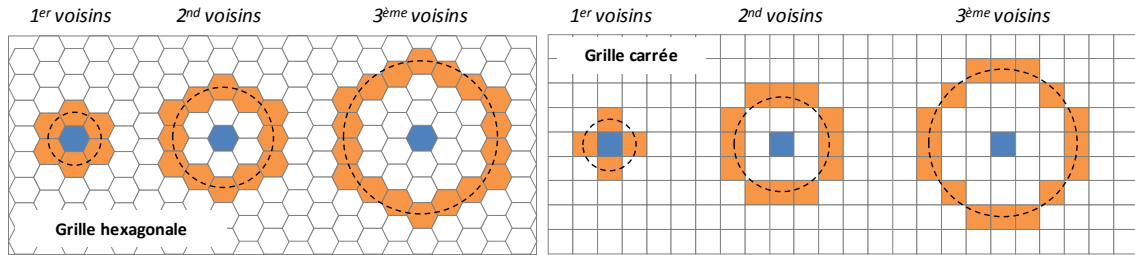


Figure A6-1. Description du kernel en fonction du type de grille de la cartographie EBSD

Au sein d'un cristal déformé présentant un gradient d'orientation, la désorientation entre deux points dépend de la distance entre ces points. Le KAM est ainsi fonction du rayon physique du kernel qui varie selon la taille du kernel en nombre de voisins et le pas de mesure EBSD. Il est donc difficile de comparer les désorientations intragranulaires de cartographies réalisées avec des pas différents. Nous décrirons alors les désorientations intragranulaires grâce à une valeur du KAM normalisée par le rayon du kernel permettant de réduire la dépendance à ce rayon de kernel. Ce KAM normalisé sera également appelé Gradient Local d'Orientation et s'exprimera en  $^{\circ}.\mu\text{m}^{-1}$  (ou  $\text{rad}.\mu\text{m}^{-1}$ ).

## ANNEXE A7

A7. REVUE BIBLIOGRAPHIQUE DES DIFFERENTS SYSTEMES DE CHAUFFAGE *IN SITU*

Dans la littérature, il existe d'autres systèmes de chauffage *in situ* utilisés pour observer la recristallisation (Kiaei et al. 1997; Humphreys et al. 1996), la migration des joints de grains (Czubayko et al. 1998; Paul et al. 2006) et également les transformations de phases (Seward et al. 2004). La plupart de ces platines chauffantes sont intégrées dans la chambre d'un MEB même si il existe des systèmes adaptés à des microscopes optiques (Czubayko et al. 1998) ou laser (Yogo et al. 2010). Dans les systèmes intégrés à un MEB, les évolutions microstructurales sont suivies soit par imagerie d'électrons rétrodiffusés (BSE) (Vorhauer et al. 2008) soit par des mesures EBSD (Hurley & Humphreys 2004). La technique EBSD a pour avantage de produire des cartographies précises de l'orientation cristallographique et donc d'être plus quantitative. On retrouve également souvent une combinaison de ces deux techniques pour suivre l'évolution de la microstructure (Seward et al. 2002; Bestmann et al. 2005; Nakamichi et al. 2008).

Peu de systèmes utilisent un chauffage par effet Joule (Liao et al. 1998; Vorhauer et al. 2008; Lens et al. 2005). La plupart des fours *in situ* sont basés sur le principe d'une sole chauffée sur laquelle l'échantillon est posé. L'échange de chaleur est réalisé par conduction entre la sole et l'échantillon (Kirch et al. 2008; Borthwick & Piazzolo 2010; Piazzolo et al. 2004). En fonction du système, l'échantillon peut avoir différentes tailles. L'aire de la surface observée est généralement de l'ordre du mm<sup>2</sup> alors que l'épaisseur peut varier de 120 µm (Mattissen et al. 2004) à 2 mm (Yogo et al. 2010; Nakamichi et al. 2008). La valeur moyenne des épaisseurs rencontrées dans la littérature se trouve autour de 1 mm. Dans notre cas, l'échantillon soudé à la fine lamelle de Ta chauffée par effet Joule a une épaisseur de 300 µm pour s'assurer d'une faible inertie thermique, ce qui permet d'atteindre des vitesses de chauffage jusqu'à 100°C/s. Lorsque le courant est coupé, on peut obtenir une vitesse de refroidissement du même ordre. Cette valeur est significativement plus élevée que celles reportées dans la littérature (de 0.2°C/s à 10°C/s, mais en général en dessous de 2°C/s) et justifie la méthode employée consistant à interrompre de manière périodique le traitement thermique afin de caractériser l'évolution de la microstructure (Humphreys et al. 1996; Kiaei et al. 1997). Les cartographies EBSD sont ainsi acquises à température ambiante. Une vraie caractérisation *in situ* en EBSD implique des cinétiques d'évolution de la microstructure suffisamment lentes (Hurley & Humphreys 2004). Lorsque la cinétique accélère, il reste l'imagerie en électrons rétrodiffusés (Seward et al. 2002), qui implique que les températures de traitements soient faibles. Dans le cas d'un matériau qui ne change pas de phase entre la température ambiante et la température de traitement, on préférera l'approche séquentielle avec des vitesses de chauffage et refroidissement suffisamment rapides pour éviter toute évolution de la microstructure pendant ces phases transitoires.

La température maximale atteinte avec le système utilisé dans cette étude est de 1200°C. La gamme de températures généralement observée dans la littérature pour les autres platines chauffantes est entre 200°C et 600°C. Quelques travaux ont été menés autour de 900°C (Seward et al. 2004; Kirch et al. 2008) et de 1250°C (Yogo et al. 2010) mais cette dernière étude n'était pas réalisée dans la chambre d'un microscope électronique à balayage.

## ANNEXE A8

### A8. METHODE DE MESURE DE LA FRACTION RECRISTALLISEE A PARTIR DE DONNEES EBSD

Une microstructure de recuit à la particularité de présenter deux types bien distincts de grains :

- Les grains recristallisés : libres de dislocations, ce qui induit de faibles désorientations intragranulaires.
- Les grains issus de la microstructure de déformation (déformés ou restaurés : avec plus ou moins de défauts cristallins, induisant des désorientations intragranulaires modérées à élevées.

Cette différence de densité de dislocations entre les deux types de grains va grandement influencer la qualité du cliché de diffraction. Ainsi les clichés des grains recristallisés seront de meilleure qualité que ceux des grains non recristallisés. Les cartographies en « IQ (Image Quality) », ou qualité du cliché de diffraction, sont donc un bon moyen de suivre la recristallisation d'une microstructure (Wilkinson & Dingley 1991; Krieger Lassen et al. 1994). A chaque pixel de la cartographie est associé un nombre représentatif de la qualité du cliché EBSD. Sur une échelle de gris, les points les plus sombres représentent les qualités de cliché les plus mauvaises.

Nous avons vu dans la partie 2 portant sur la description de l'état déformé, que le gradient local d'orientation (Kernel Average Misorientation divisé par le rayon du kernel, annexe A6) était un moyen de représentation quantitative de la répartition de l'énergie stockée dans une microstructure révélée par EBSD. Ce paramètre étant local (échelle du pixel), il s'avère très utile dans la description des grains déformés, de leurs sous-structures et de leurs désorientations intragranulaires. En ce qui concerne les grains recristallisés, un indicateur local n'est pas adapté. Nous allons alors nous baser sur une grandeur définie à l'échelle du grain qu'est le « Grain Orientation Spread » (ou GOS) pour définir si un grain est recristallisé ou non.

Le « Grain Orientation Spread » est calculé pour chacun des grains de la microstructure. Il correspond à la moyenne des angles de désorientation entre l'orientation de chaque pixel du grain et l'orientation moyenne du grain. Dans une microstructure partiellement recristallisée, les pixels constituant un grain recristallisé vont peu fluctuer autour de l'orientation moyenne, le GOS sera alors faible. Au contraire dans un grain déformé, les orientations locales peuvent fortement dévier de l'orientation moyenne du grain, le GOS sera alors élevé. On obtient ainsi une distribution de la valeur du GOS dont le profil dépend de l'avancement de la recristallisation (figure A8-1).

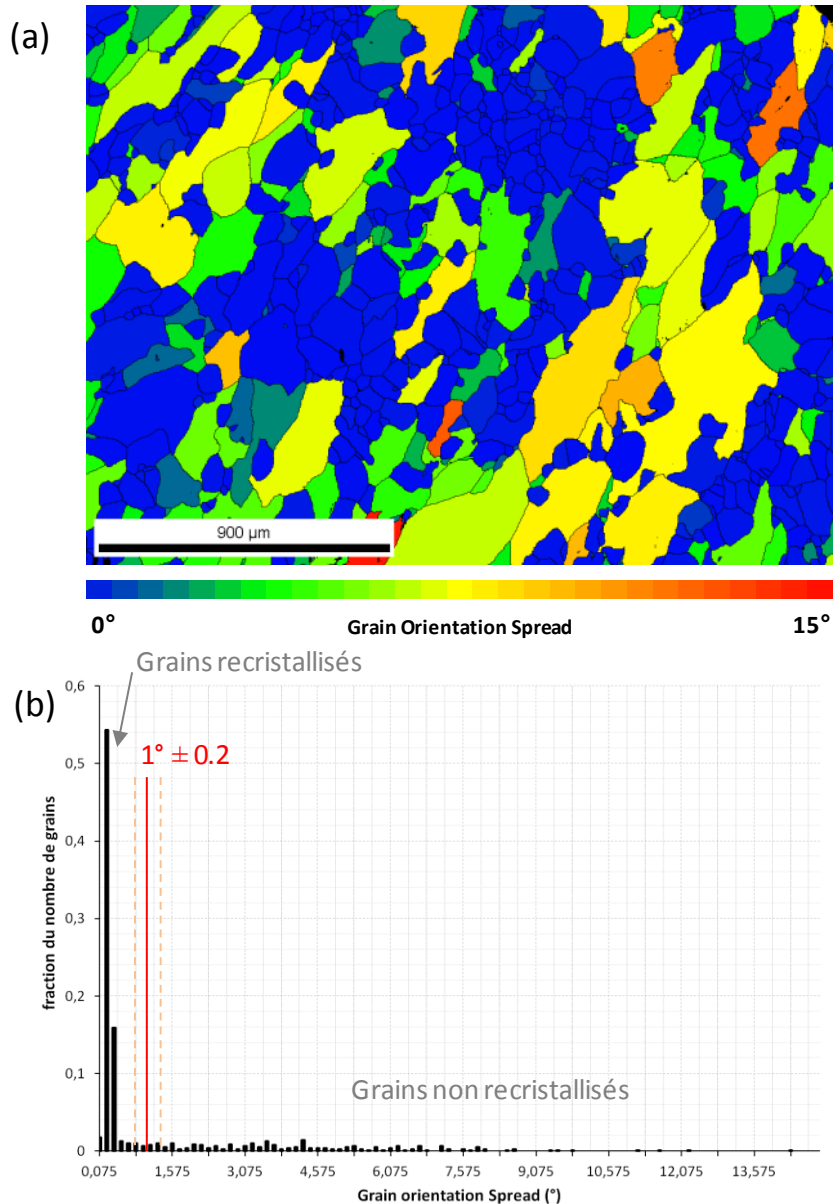


Figure A8-1. (a) Exemple d'une microstructure partiellement recristallisée pour laquelle le GOS a été calculé pour chaque grain

(b) Distribution correspondante des GOS

Pour définir quels grains sont considérés comme recristallisés, il est nécessaire de définir un seuil du GOS. En observant la distribution des GOS sur la figure A8-1.b, on voit un pic très net pour les faibles valeurs qui correspond aux grains recristallisés. On peut définir le seuil à  $1^\circ$ , qui correspond par ailleurs à l'ordre de grandeur de la précision de la mesure d'orientation par la technique EBSD dans les conditions où elle a été mise en oeuvre. Cette valeur limite dépend des conditions d'acquisition des données EBSD, qui définit la précision de la mesure d'orientation. Elle dépend également de la microstructure analysée. En effet, des grains restaurés ou peu déformés présentent aussi une valeur de GOS faible. Il s'agira donc de bien choisir le seuil en fonction de tous ces paramètres. On peut définir une fourchette pour le seuil de définition des grains recristallisés entre  $0,8^\circ$  et  $1,2^\circ$  que l'on choisira selon le profil de la distribution des GOS et selon un contrôle visuel en observant les grains qui paraissent recristallisés dans la microstructure (critère morphologique principalement). La figure A8-2 montre

la microstructure binarisée en grains recristallisés (en bleu) et grains non recristallisés (en rouge). La fraction surfacique de grains recristallisés est donc accessible à partir de cette analyse (sur la figure A8-2 environ 50%).

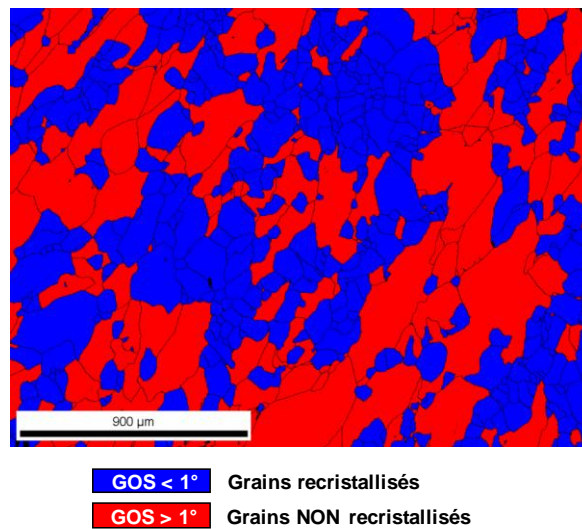


Figure A8-2. Discrimination des grains recristallisés dans une microstructure partiellement recristallisée à l'aide du Grain Orientation Spread (seuil à 1°)



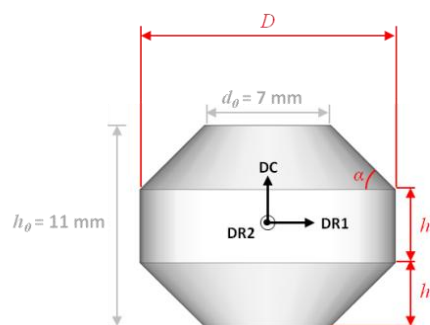
## ANNEXE A9

## A9. OPTIMISATION DE LA GEOMETRIE DE L'ESSAI DOUBLE CONE PAR SIMULATION NUMERIQUE

La géométrie de l'éprouvette « double cône » (ou DECC pour « Double Cône Compression ») a été adaptée par simulation numérique basée sur la méthode des éléments finis à partir de la géométrie proposée par Semiatin (Weaver & Semiatin 2007), afin de satisfaire deux critères principaux :

1. L'éprouvette doit pouvoir être usinée dans une tôle de 11 mm d'épaisseur
2. Le gradient de densité de dislocations équivalente doit être le plus fort possible, c'est-à-dire que le centre doit présenter une densité de dislocations la plus élevée possible alors que le bord de l'échantillon doit se déformer le moins possible.

En premier lieu, la géométrie de l'éprouvette originelle doit être modifiée pour satisfaire le premier critère. Une de ces dimensions doit être inférieure ou égale à 11 mm. Dans notre cas, le diamètre  $d_0$  de la surface en contact avec les outils est fixé à 7 mm (diamètre des pions de compression utilisés dans la thèse de M. Houillon (Houillon 2009)). Ainsi, pour conserver un maximum de possibilités de modification de cette géométrie, la hauteur  $h_0$  est fixée à 11 mm. La figure A9-1 présente la géométrie de l'éprouvette DECC que nous allons prendre en compte pour le départ de l'optimisation. Pour satisfaire le critère n°2 sur le gradient de densité de dislocations, quatre paramètres géométriques sont à optimiser :  $D$ ,  $h$ ,  $h'$  et  $\alpha$ .



**Figure A9-1. Géométrie de départ de l'éprouvette "double cône" et définition du repère de référence. Les valeurs fixes sont en gris et les paramètres susceptibles d'évoluer sont en rouge**

Pour optimiser cette géométrie, l'essai DECC est simulé à l'aide du logiciel FORGE® en utilisant la loi de comportement basée sur la densité de dislocations équivalente détaillée dans la partie 2. Le problème étant axisymétrique, seulement 1/8 de la géométrie du « double cône » a été modélisé afin de réduire le temps de calcul. Les paramètres utilisés lors des simulations sont récapitulés dans le tableau A9-1. La grandeur à laquelle nous nous intéressons est la densité de dislocations équivalente le long de l'axe DR1 dont l'origine est placée au centre de l'éprouvette. Toutes les valeurs de densité de dislocations sont relatives (normalisées par rapport à la valeur du matériau recristallisé) et arrondies à 0,1 près. Les paramètres géométriques de l'éprouvette de départ sont donnés dans le tableau A9-2.

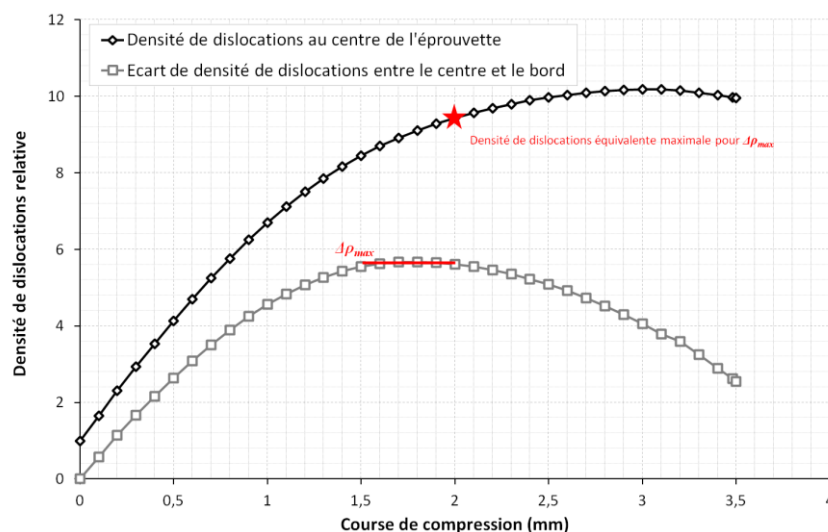
**Tableau A9-1. Paramètres de la simulation numérique de l'essai DECC**

Taille de maille	0.25 mm
Vitesse de déplacement de l'outil	0.1 mm/s
Température	20°C
Frottement avec les outils	Collant
Echange thermique avec l'air $h_{air}$	10 W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>
Echange thermique avec les outils $h_{out}$ (Houillon 2009)	8500 W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>

**Tableau A9-2. Valeurs des paramètres géométriques de la simulation de départ**

Paramètre	D (mm)	h (mm)	h' (mm)	$\alpha$ (°)
Valeur	14	4	3,5	45

La figure A9-2 montre l'évolution de la densité de dislocations maximale et du gradient de densité entre le centre et le bord de l'éprouvette en fonction de la course de compression. La course de compression maximale est fixée à la valeur de  $h'$  pour éviter que la partie cylindrique externe de l'éprouvette ne soit déformée en compression. Avec cette géométrie de départ, l'écart de densité de dislocations présente un maximum pour une course de compression comprise entre 1,5 mm et 2 mm. Cependant pour cette dernière, la valeur de densité de dislocations au centre est d'environ 9,5. Il apparaît donc que la course optimale pour cette géométrie est de 2 mm.

**Figure A9-2. Densité de dislocations maximale et écart entre le centre et le bord de l'éprouvette en fonction de la course de compression**

Avec cette première conclusion, on peut d'ores et déjà modifier la géométrie en limitant la hauteur des cônes  $h'$  à 2mm et en augmentant en conséquence la hauteur de la partie cylindrique  $h$  à 7mm. L'augmentation de cette dernière dimension va également permettre de faciliter la découpe pour une observation dans le plan (DR1, DR2) et de rendre l'observation dans le plan (DR1, DC) moins sensible à l'écartement au plan médian. La modification de  $h$  ne modifie pas la densité de dislocations équivalente sur un rayon du plan médian (DR1) (figure A9-4).

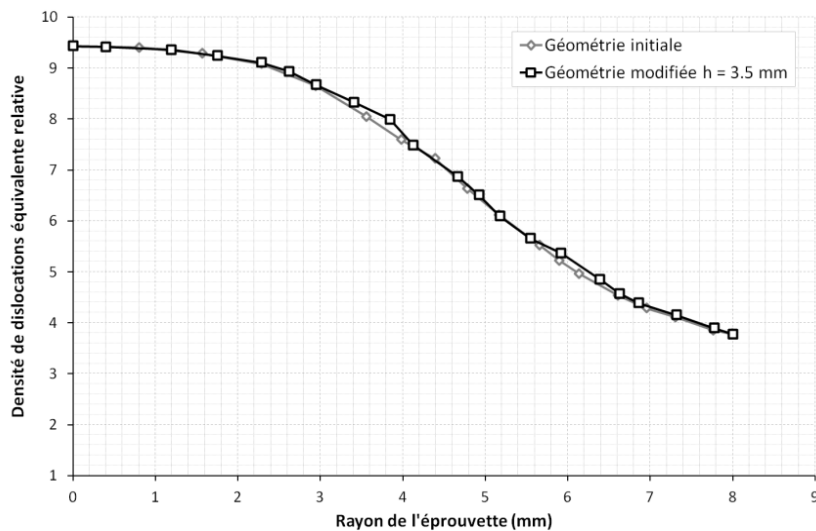


Figure A9-3. Répartition de la densité de dislocations le long d'un rayon pour la géométrie initiale et pour la géométrie modifiée au niveau de la hauteur de la partie cylindrique

Pour augmenter la différence de densité de dislocations équivalente entre le centre et le bord, la solution est de diminuer la déformation du bord de l'éprouvette pour y diminuer la valeur de la densité de dislocations. Pour ceci, nous pouvons en premier lieu augmenter la valeur du diamètre  $D$  tout en conservant la valeur de  $\alpha = 45^\circ$ . On observe très clairement sur la figure A9-4 que la valeur de densité de dislocations au centre reste inchangée alors que la valeur au bord diminue. Si on augmente encore la valeur du diamètre, la diminution de densité de dislocations n'est plus significative car elle évolue très lentement dans les zones peu déformées. La diminution de la densité de dislocations au bord de l'échantillon est principalement due à la différence de rayon entre la partie cylindrique et la base des parties coniques. On fixe alors cet écart à 7 mm.

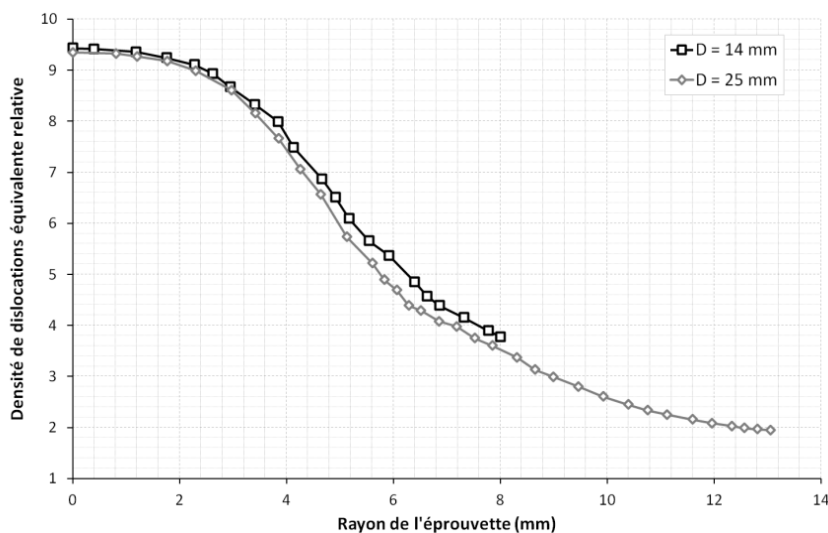


Figure A9-4. Répartition de la densité de dislocations le long d'un rayon en fonction du diamètre de la partie cylindrique

Le dernier paramètre géométrique pouvant influencer le gradient de densité de dislocations est l'angle  $\alpha$ . Une modification de cet angle implique également une modification du

diamètre de la partie cylindrique. Sur la figure A9-5, les répartitions des densités de dislocations le long du rayon pour les trois angles considérés ( $22,5^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $67,5^\circ$ ) montrent que l'angle n'a pas d'influence sur l'écart de densité de dislocations. Par contre, l'angle le plus faible présente l'avantage d'augmenter le rayon de la partie cylindrique. L'évolution de la densité de dislocations équivalente sera donc plus progressive entre le centre et le bord facilitant ainsi la détection du seuil de recristallisation.

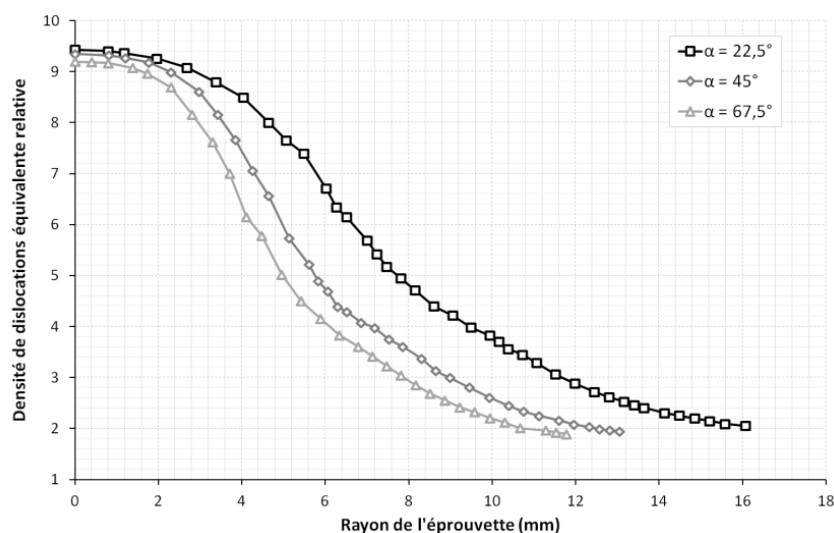


Figure A9-5. Répartition de la densité de dislocations le long d'un rayon en fonction de l'angle  $\alpha$

A partir des observations réalisées ci-dessus, on peut conclure que la nouvelle géométrie proposée par rapport à celle utilisée dans les travaux de Weaver et Semiatin permet d'augmenter l'écart de densité de dislocations entre le centre et le bord de l'éprouvette. Les différents paramètres de la géométrie permettent à la fois de jouer sur la distribution de densité de dislocations et de contrôler l'étendue de la zone qui sera analysée. Une zone assez grande permettra d'effectuer plus de mesures de dureté le long d'un rayon et également de mieux capter le seuil de densité de dislocations pour déclencher la recristallisation.

La figure A9-6 illustre l'évolution de la géométrie depuis celle du départ de l'optimisation.

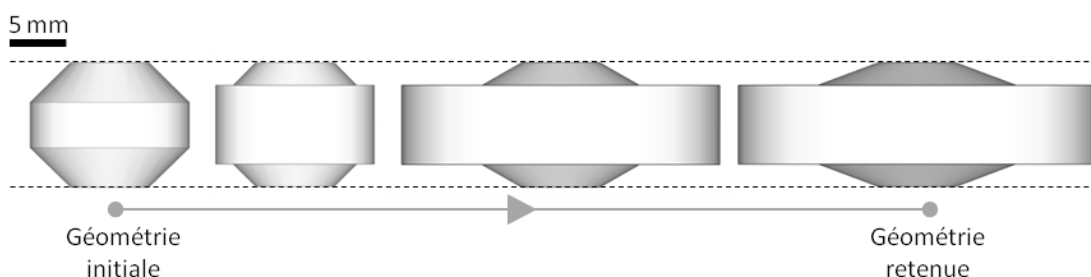


Figure A9-6. Evolution de la géométrie de l'éprouvette DECC entre le début et la fin de l'optimisation



## REFERENCES.

- Antunes, J.M., Menezes, L.F. & Fernandes, J.V., 2007. Influence of Vickers tip imperfection on depth sensing indentation tests. *International Journal of Solids and Structures*, 44(9), pp.2732–2747.
- Antunes, J.M., Menezes, L.F. & Fernandes, J.V., 2006. Three-dimensional numerical simulation of Vickers indentation tests. *International Journal of Solids and Structures*, 43(3-4), pp.784–806.
- Attallah, M.M., Strangwood, M. & Davis, C.L., 2010. Influence of the heating rate on the initiation of primary recrystallization in a deformed Al-Mg alloy. *Scripta Materialia*, 63, pp.371–374.
- Avrami, M., 1939. Kinetics of Phase Change. I General Theory. *Journal of chemical physics*, 7(12), pp.1103–1112.
- Beckenhauer, D., Niessen, P. & Pick, R., 1993. Effect of the heating rate on the recrystallization temperature of tantalum. *Journal of Materials Science Letters*, 12, pp.449–450.
- Bénard, J. et al., 1969. Autodiffusion par lacunes. In M. et Cie, ed. *Métallurgie générale*. Paris, pp. 105–107.
- Bernacki, M. et al., 2009. Finite element model of primary recrystallization in polycrystalline aggregates using a level set framework. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 17(6), p.064006.
- Bernacki, M., Logé, R. E & Coupez, T., 2011. Level set framework for the finite-element modelling of recrystallization and grain growth in polycrystalline materials. *Scripta Materialia*, 64(6), pp.525–528.
- Bernard, P. et al., 2011. A two-site mean field model of discontinuous dynamic recrystallization. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 528(24), pp.7357–7367.
- Bestmann, M. et al., 2005. Microstructural evolution during initial stages of static recovery and recrystallization: new insights from in-situ heating experiments combined with electron backscatter diffraction analysis. *Journal of Structural Geology*, 27, pp.447–457.
- Bolmaro, R.E., Lebensohn, R.A. & Brokmeier, H.G., 1997. Crystal spin in two-sites self consistent models: From kinematics to kinetics. *Computational Materials Science*, 9(1-2), pp.237–250.
- Borthwick, V.E. & Piazzolo, S., 2010. Post-deformational annealing at the subgrain scale: Temperature dependent behaviour revealed by in-situ heating experiments on deformed single crystal halite. *Journal of Structural Geology*, 32, pp.982–996.
- Bozzolo, N., Jacomet, S. & Logé, R.E., 2012. Fast in-situ annealing stage coupled with EBSD: A suitable tool to observe quick recrystallization mechanisms. *Materials Characterization*, 70, pp.28–32.
- Bréchet, Y. & Martin, G., 2006. Nucleation problems in metallurgy of the solid state: recent developments and open questions. *Comptes Rendus Physique*, 7(9-10), pp.959–976.
- Bréchet, Y., Zurob, H.S. & Hutchinson, C., 2009. On the effect of pre-recovery on subsequent recrystallization. *International Journal of Materials Research*, 100, pp.1446–1448.
- Briant, C.L. et al., 2000. Recrystallization textures in tantalum sheet and wire. *International Journal of Refractory Metals & Hard Materials*, 18, pp.1–8.
- Bunge, H., 1982. *Texture analysis in material science*, London: Butterworths.

- Buy, F., 1996. *Etude expérimentale et modélisation du comportement plastique d'un tantale. Prise en compte de la vitesse de déformation et de l'histoire du chargement*. Thèse de doctorat. Université de Metz.
- Buy, F. et al., 1997. Evaluation of the parameters of a constitutive model for bcc metals based on thermal activation. *Journal De Physique Iv*, 7, pp.631–636.
- Cahn, J., 1962. The impurity-drag effect in grain boundary motion. *Acta Metallurgica*, 10(9), pp.789–798.
- Chen, S.R. & Gray III, G.T., 1996. Constitutive Behavior of Tantalum and Tantalum-Tungsten Alloys. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 27A, pp.2994–3006.
- Chun, Y.B., Semiatin, S.L. & Hwang, S.K., 2006. Monte Carlo modeling of microstructure evolution during the static recrystallization of cold-rolled, commercial-purity titanium. *Acta Materialia*, 54(14), pp.3673–3689.
- Czubayko, U. et al., 1998. Influence of triple junctions on grain boundary motion. *Acta Materialia*, 46, pp.5863–5871.
- Dillamore, I., Smith, C. & Watson, T., 1967. Oriented Nucleation in the Formation of Annealing Textures in Iron. *Materials Science and Technology*, 1(1), pp.49–54.
- Doherty, R.D. et al., 1997. Current issues in recrystallization: a review. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 238, pp.219–274.
- Fan, D. & Chen, L.Q., 1997. Computer simulation of grain growth using a continuum field model. *Acta Materialia*, 45, pp.611–622.
- Farré, J. & Buy, F., 1999. *Saturation des propriétés mécaniques à grandes déformations*, Communication interne.
- Farré, J., Buy, F. & Llorca, F., 2001. *Modèle EDD sur tantale pétri 3D Prise en compte de l'influence de la température et de la vitesse de déformation*, Communication interne.
- Fresnois, S., 2001. *Modélisation polycristalline du comportement mécanique du tantale. Application à la mise en forme par hydroformage*. Thèse de doctorat. Ecole Centrale Paris.
- Gaudout, B., 2009. *Modélisation des évolutions microstructurales et étude de la lubrification par film solide lors du filage à chaud d'alliages de zirconium*. Thèse de doctorat. Mines ParisTech.
- Goetz, R.L. & Seetharaman, V., 1998. Static recrystallization kinetics with homogeneous and heterogeneous nucleation using a cellular automata model. *Metallurgical and Materials Transactions A-Physical Metallurgy and Materials Science*, 29, pp.2307–2321.
- Gottstein, G & Shvindlerman, L.S., 1999. *Grain boundary migration in Metals: thermodynamics, kinetics, applications*, CRC Press LLC.
- Gourdet, S. & Montheillet, F., 2003. A model of continuous dynamic recrystallization. *Acta Materialia*, 51(9), pp.2685–2699.
- Hartwig, K.T. et al., 2002. Hardness and microstructure changes in severely deformed and recrystallized tantalum. *Ultrafine Grained Materials II*, 2, pp.151–160.



- Hirth, J.P., 1972. The influence of grain boundaries on mechanical properties. *Metallurgical Transactions A-Physical Metallurgy and Materials Science*, 3(12), pp.3047–3067.
- Hoge, K.G. & Mukherjee, A.K., 1977. The temperature and strain rate dependance of the flow stress of tantalum. *Journal of Materials Science*, 12, p.1666.
- Holm, E.A., Miodownik, M.A. & Rollett, A D, 2003. On abnormal subgrain growth and the origin of recrystallization nuclei. *Acta Materialia*, 51(9), pp.2701–2716.
- Hosseini, E. & Kazeminezhad, M., 2009. Dislocation structure and strength evolution of heavily deformed tantalum. *International Journal of Refractory Metals & Hard Materials*, 27, pp.605–610.
- Houillon, M., 2009. *Modélisation du procédé de fluotournage du tantale et du traitement thermique associé*. Thèse de doctorat. Mines ParisTech.
- Huang, Ke, 2011. *Towards the modeling of recrystallization phenomena in multi-pass conditions - Application to 304L steel*. Thèse de doctorat. Mines ParisTech.
- Huang, Y. & Humphreys, F.J., 1999. Measurements of grain boundary mobility during recrystallization of a single-phase aluminium alloy. *Acta Materialia*, 47, pp.2259–2268.
- Humphreys, F.J. et al., 1996. Combined in situ SEM annealing and EBSD of deformed materials. *Textures and Microstructures*, 26-27, pp.281–301.
- Humphreys, F.J. & Hatherly, M., 2004. *Recrystallization and related annealing phenomena* 2nd editio., Elsevier Ltd.
- Hupalo, M.F. & Sandim, H.R.Z., 2001. The annealing behavior of oligocrystalline tantalum deformed by cold swaging. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 318, pp.216–223.
- Hurley, P.J. & Humphreys, F.J., 2004. A study of recrystallization in single-phase aluminium using in-situ annealing in the scanning electron microscope. *Journal of Microscopy-Oxford*, 213, pp.225–234.
- Hutchinson, B., 1992. Nucleation of recrystallization. *Scripta Metallurgica et Materialia*, 27, pp.1471–1475.
- Isbell, W.M., Christman, D.R. & Babcock, S.G., 1972. *Measurements of dynamic properties of materials, volume VI: tantalum*, Warren, MI.
- Ivasishin, O.M. et al., 2006. A 3-D Monte-Carlo (Potts) model for recrystallization and grain growth in polycrystalline materials. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 433, pp.216–232.
- Jaoul, B., 2008. *Etude de la plasticité et application aux métaux*, Presses de l'école des mines de Paris.
- Johnson, W.A. & Mehl, R.F., 1939. Reaction kinetics in processes of nucleation and growth. *Transactions of metallurgical Society of AIME*, 135, p.416.
- Jonas, J. & Barnett, M., 1997. Influence of ferrite rolling temperature on microstructure and texture in deformed low C and IF steels. *ISIJ International*, 37(7), pp.697–705.

- Jonhson, G.R. & Cook, W.H., 1983. A constitutive model and data for metals subjected to large strains, high strain rates and high temperatures. In *Proceedings of the 7th International Symposium on Ballistics*. pp. 541–547.
- Kapoor, R. & Nemat-Nasser, S., 2000. Comparison between high and low strain-rate deformation of tantalum. *Metallurgical and Materials Transactions A-Physical Metallurgy and Materials Science*, 31, pp.815–823.
- Kiaei, M., Chiron, R. & Bacroix, B., 1997. Investigation of recrystallization mechanisms in steels during in situ annealing in a SEM. *Scripta Materialia*, 36, pp.659–666.
- Kirch, D.M. et al., 2008. Laser powered heating stage in a scanning electron microscope for microstructural investigations at elevated temperatures. *Review of Scientific Instruments*, 79.
- Klepaczko, J., 1975. Thermally activated flow and strain rate history for some polycrystalline fcc metals. *Materials Science and Engineering*, 18, pp.121–135.
- Kolmogorov, A., 1937. A statistical theory for the recrystallization of metals. *Izv. Akad. nauk. USSR-Ser-Matemat*, 1(3), p.355.
- Krieger Lassen, N.C., Juul Jensen, D. & Conradsen, K., 1994. Automatic recognition of deformed and recrystallized regions of partially recrystallized samples using electron backscattering patterns. *Materials Science Forum*, 157-162, pp.149–158.
- Kubin, L.P. & Mortensen, A., 2003. Geometrically necessary dislocations and strain-gradient plasticity: a few critical issues. *Scripta Materialia*, 48(2), pp.119–125.
- Kugler, G. & Turk, R., 2006. Study of the influence of initial microstructure topology on the kinetics of static recrystallization using a cellular automata model. *Computational Materials Science*, 37(3), pp.284–291.
- Lassila, D.H., Goldberg, A. & Becker, R., 2002. The Effect of Grain Boundaries on the Athermal Stress of Tantalum and Tantalum-Tungsten Alloys. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 33A, pp.3457–3464.
- Le, J., Weygand, D. & Brechet, Y., 1999. Zener Pinning and grain growth: a two-dimensional vertex computer simulation. *Acta Materialia*, 47(3), pp.961–970.
- Lens, A., Maurice, C. & Driver, J.H., 2005. Grain boundary mobilities during recrystallization of Al-Mn alloys as measured by in situ annealing experiments. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 403, pp.144–153.
- Liao, G.J., Le Gall, R. & Saindrenan, G., 1998. Experimental investigations into kinetics of recrystallisation of cold rolled nickel. *Materials Science and Technology*, 14, pp.411–416.
- Logé, R E et al., 2008. Linking plastic deformation to recrystallization in metals using digital microstructures. *Philosophical Magazine*, 88(30-32), pp.3691–3712.
- Lücke, K. & Stüwe, H.P., 1963. No Title. In L. Himmel, ed. *Recovery and recrystallization in metals*. Interscience publications, p. 171.
- Mach, J.C., Beaudoin, A.J. & Acharya, A., 2010. Continuity in the plastic strain rate and its influence on texture evolution. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 58(2), pp.105–128.

- Manonukul, A. & Dunne, F.P.E., 1999. Initiation of dynamic recrystallization under inhomogeneous stress states in pure copper. *Acta Materialia*, 47, pp.4339–4354.
- Martorano, M.A. et al., 2007. Observations of grain boundary protrusions in static recrystallization of high-purity bcc metals. *Scripta Materialia*, 56, pp.903–906.
- Masing, G. & Raffelsieper, J., 1950. Mechanische Erholung von Aluminium-Einkristallen. *Zeitschrift Fur Metallkunde*, 41, p.65.
- Mathaudhu, S.N. & Hartwig, K.T., 2006. Grain refinement and recrystallization of heavily worked tantalum. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 426, pp.128–142.
- Mathaudhu, S.N. & Hartwig, K.T., 2007. Processing microstructure property relationships in severely deformed tantalum. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 463, pp.94–100.
- Mattissen, D. et al., 2004. In-situ investigation of grain boundary and triple junction kinetics in aluminium-10 p.p.m. magnesium. *Journal of Microscopy-Oxford*, 213, pp.257–261.
- Maurice, C. & Humphreys, F.J., 1998. 2-D and 3-D curvature driven vertex simulations of grain growth. In H. Weiland, B. Adams, & A. Rollett, eds. *Grain Growth in Polycrystalline Materials III*. pp. 81–90.
- Michalak, J.T. & Paxton, H.W., 1961. Some recovery characteristics of zone-melted iron. *Transactions of metallurgical Society of AIME*, 221, p.850.
- Miodownik, M.A., 2002. A review of microstructural computer models used to simulate grain growth and recrystallisation in aluminium alloys. *Journal of Light Metals*, 2(3), pp.125–135.
- Moelans, N., Wendler, F. & Nestler, B., 2009. Comparative study of two phase-field models for grain growth. *Computational Materials Science*, 46(2), pp.479–490.
- Molodov, D A et al., 1998. On the effect of purity and orientation on grain boundary motion. *Acta Materialia*, 46(2), pp.553–564.
- Montano-Zuniga, I.M. et al., 2010. Numerical simulation of recrystallization in BCC metals. *Computational Materials Science*, 49, pp.512–517.
- Montheillet, F., Lurdos, O. & Damamme, G., 2009. A grain scale approach for modeling steady-state discontinuous dynamic recrystallization. *Acta Materialia*, 57(5), pp.1602–1612.
- Nakamichi, H., Humphreys, F.J. & Brough, I., 2008. Recrystallization phenomena in an IF steel observed by in situ EBSD experiments. *Journal of Microscopy*, 230, pp.464–471.
- Nemat-Nasser, S. & Kapoor, R., 2001. Deformation behavior of tantalum and a tantalum tungsten alloy. *International Journal of Plasticity*, 17, pp.1351–1366.
- Neumann, G. & Tuijn, C., 2009. *Self-diffusion and Impurity Diffusion in Pure Metals: handbook of experimental data*, Elsevier Ltd.
- Park, C.H., Hong, S.-G. & Lee, C.S., 2011. A unified constitutive model for quasi-static flow responses of pure Ta and Ta–W alloys. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 528(3), pp.1154–1161.

- Paul, H. et al., 2006. Scanning electron microscopy and transmission electron microscopy in situ studies of grain boundary migration in cold-deformed aluminium bicrystals. *Journal of Microscopy-Oxford*, 223, pp.264–267.
- Piazolo, S. et al., 2004. The potential of combined in situ heating experiments and detailed EBSD analysis in the investigation of grain scale processes such as recrystallization and phase transformation. *Materials Science Forum*, 467-470, pp.1407–1412.
- Piękoś, K. et al., 2008. Generalized vertex model of recrystallization – Application to polycrystalline copper. *Computational Materials Science*, 42(4), pp.584–594.
- Price, C.W., 1989. Comments on the extent of simultaneous recovery during recrystallization and its effect on recrystallization kinetics. *Scripta Metallurgica*, 23(8), pp.1273–1276.
- Primig, S. et al., 2012. Influence of the heating rate on the recrystallization behavior of molybdenum. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 535, pp.316–324.
- Raabe, D., 1999. Introduction of a scalable three-dimensional cellular automaton with a probabilistic switching rule for the discrete mesoscale simulation of recrystallization phenomena. *Philosophical Magazine*, 79(10), pp.2339–2358.
- Raabe, D. et al., 1994. Texture and microstructure of rolled and annealed tantalum. *Materials Science and Technology*, 10, pp.299–305.
- Raghavan, S. & Sahay, S.S., 2009. Modeling the topological features during grain growth by cellular automaton. *Computational Materials Science*, 46(1), pp.92–99.
- Regazzoni, G., 1983. *Comportement et ductilité du cuivre et du tantale purs dans le domaine de vitesse de déformation  $10^{-4}$  -  $3 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$* . Thèse de doctorat. Institut national polytechnique de Grenoble.
- Richards, D.W. et al., 2003. Annealing studies of pure and alloyed tantalum employing rocking curves. *Advances in X-ray Analysis*, 46, pp.285–290.
- Rollett, A D, 1997. Overview of modeling and simulation of recrystallization. *Progress in Materials Science*, 42, pp.79–99.
- Rollett, Anthony D & Raabe, D., 2001. A hybrid model for mesoscopic simulation of recrystallization. *Computational Materials Science*, 21, pp.69–78.
- Saltykov, S., 1958. *Stereometric metallography*, Moscow.
- Sandim, H.R.Z. et al., 1999. Grain subdivision and recrystallization in oligocrystalline tantalum during cold swaging and subsequent annealing. *International Journal of Refractory Metals & Hard Materials*, 17, pp.431–435.
- Sandim, H.R.Z. et al., 2005. Recrystallization of oligocrystalline tantalum deformed by cold rolling. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 392, pp.209–221.
- Sandim, H.R.Z., Martins, J.P. & Padilha, A.F., 2001. Orientation effects during grain subdivision and subsequent annealing in coarse-grained tantalum. *Scripta Materialia*, 45, pp.733–738.
- Sandim, H.R.Z., Mcqueen, H.J. & Blum, W., 2000. Microstructure of cold swaged tantalum at large strains. *Scripta Materialia*, 42, pp.151–156.

- Seward, G.G.E. et al., 2002. High-temperature electron backscatter diffraction and scanning electron microscopy imaging techniques: In-situ investigations of dynamic processes. *Scanning*, 24, pp.232–240.
- Seward, G.G.E. et al., 2004. In situ SEM-EBSD observations of the HCP to BCC phase transformation in commercially pure titanium. *Acta Materialia*, 52, pp.821–832.
- Simonsen, E., 1960. Twinning in iron. *Acta Metallurgica*, 8(11), pp.809–810.
- Srolovitz, D. et al., 1988. Computer simulation of recrystallization—II. Heterogeneous nucleation and growth. *Acta Metallurgica*, 36(8), pp.2115–2128.
- Srolovitz, D. et al., 1983. Grain growth in two dimensions. *Scripta Metallurgica*, 17(2), pp.241–246.
- Srolovitz, D., Grest, G. & Anderson, M., 1986. Computer simulation of recrystallization-I. Homogeneous nucleation and growth. *Acta Metallurgica*, 34(9), pp.1833–1845.
- Stüwe, H.P., Padilha, A.F. & Siciliano, F., 2002. Competition between recovery and recrystallization. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 333, pp.361–367.
- Syha, M. & Weygand, D., 2010. A generalized vertex dynamics model for grain growth in three dimensions. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 18(1), p.015010.
- Tabor, D., 1951. *The hardness of metals*, Oxford University Press.
- Takaki, T. & Tomita, Y., 2010. Static recrystallization simulations starting from predicted deformation microstructure by coupling multi-phase-field method and finite element method based on crystal plasticity. *International Journal of Mechanical Sciences*, 52(2), pp.320–328.
- Transvalor, 2011. Forge 2011 Documentation - Datafile Forge3v75.
- Vandermeer, R.A. & Snyder, W.B., 1979. Recovery and recrystallization in rolled tantalum single crystals. *Metallurgical Transactions A-Physical Metallurgy and Materials Science*, 10, pp.1031–1044.
- Viltange, M., 1975. Formation of annealing twins during recrystallization of high-purity iron. *Comptes Rendus Hebdomadaires Des Séances De L'Academie Des Sciences Serie C*, 280, pp.69–71.
- Vorhauer, A., Scheriau, S. & Pippan, R., 2008. In-situ annealing of severe plastic-deformed OFHC copper. *Metallurgical and Materials Transactions a-Physical Metallurgy and Materials Science*, 39A, pp.908–918.
- Wasilewski, R., 1966. Annealing twins and twin-boundary intersections in niobium. *Acta Metallurgica*, 14(3), pp.433–436.
- Wasilewski, R., 1967. BCC stacking fault energies. *Scripta Metallurgica*, 1(1), pp.45–47.
- Weaver, D.S. & Semiatin, S.L., 2007. Recrystallization and grain growth behavior of a nickel-base superalloy during multi-hit deformation. *Scripta Materialia*, 57, pp.1044–1047.
- Wei, Q. et al., 2003. Microstructure and mechanical properties of tantalum after equal channel angular extrusion (ECAE). *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 358, pp.266–272.

- Weygand, D., Brechet, Y. & Lepinoux, J., 2001. A Vertex Simulation of Grain Growth in 2D and 3D. *Advanced Engineering Materials*, 3(1-2), pp.67–71.
- Wilkinson, A.J. & Dingley, D.J., 1991. Quantitative deformation studies using electron back scatter patterns. *Acta Metallurgica and Materialia*, 39(12), pp.3047–3055.
- Yogo, Y., Tanaka, K. & Nakanishi, K., 2010. In-situ Observation of Grain Growth and Recrystallization of Steel at High Temperature T. W. N. R. W. I. M. Chandra, ed. *Materials Science Forum*, 638-642, pp.1077–1082.
- Zhang, Y., Godfrey, A. & Jensen, Dorte Juul, 2011. Local boundary migration during recrystallization in pure aluminium. *Scripta Materialia*, 64(4), pp.331–334.
- Zhao, H. et al., 1996. A Variational Level Set Approach to Multiphase Motion. *Journal of Computational Physics*, 127, pp.179–195.
- Zurob, H, Brechet, Y. & Dunlop, J., 2006. Quantitative criterion for recrystallization nucleation in single-phase alloys: Prediction of critical strains and incubation times. *Acta Materialia*, 54(15), pp.3983–3990.



## Analyse des mécanismes de recristallisation statique du tantale déformé à froid pour une modélisation en champ moyen

**RESUME :** L'objectif de ce travail est de prédire les évolutions microstructurales se produisant dans le tantale pur lors d'un traitement thermique en fonction de son état microstructural initial. La restauration, la recristallisation et la croissance de grains sont décrites à l'aide d'un modèle en champ moyen qui nécessite une description adéquate de la microstructure, en termes de distributions de tailles de grains et de densités de dislocations équivalentes. La densité de dislocation équivalente moyenne peut être évaluée par une simple mesure de dureté Vickers. L'établissement de la relation dureté-densité de dislocations nécessite l'utilisation d'une loi de comportement basée sur la densité de dislocations équivalente. Les évolutions microstructurales au cours d'un traitement thermique ont été observées et les paramètres pilotant ces phénomènes ont été identifiés à l'aide d'essais originaux comme l'observation *in situ* de la recristallisation ou l'utilisation d'essais à gradient de déformation pour déterminer le seuil de densité de dislocations équivalente pour déclencher la recristallisation. Des essais plus classiques ont permis d'obtenir des cinétiques de recristallisation dans la gamme 1000°C-1100°C pour différentes microstructures initiales. Les simulations des différents traitements thermiques à l'aide du modèle à champ moyen rendent bien compte des évolutions microstructurales en termes de fraction recristallisée et de taille des grains recristallisés pour des microstructures faiblement déformées ou fortement déformées et fragmentées, en utilisant une description adéquate du type de microstructure initiale. Le modèle devra en revanche être adapté pour traiter le cas de microstructures intermédiaires, en enrichissant non seulement la description de la microstructure initiale mais également celle de l'étape de germination des grains recristallisés. Il deviendra alors capable de prédire les évolutions de microstructures pour tout type de microstructure initiale de tantale.

**Mots clés :** tantale, recristallisation statique, modélisation en champ moyen, comportement mécanique, densité de dislocations

## Analysis of static recrystallization mechanisms of cold-worked tantalum for mean-field modeling

**ABSTRACT :** This study aims at predicting the microstructural evolution of pure tantalum during annealing according the initial microstructural state. Static recovery and discontinuous recrystallization as well as grain growth are described using a mean-field model requiring an appropriate description of the microstructure, using both equivalent dislocation densities and grain sizes distributions. The average equivalent dislocation density can be assessed from Vickers microhardness measurements. The calibration of such a relation between microhardness and dislocation density involves the use of a dislocation density-based constitutive law. Microstructural evolutions during annealing have been observed and control parameters of these phenomena have been determined using original tests such as *in situ* observation of the recrystallization process or the use of strain gradient samples to assess the critical dislocation density for the onset of recrystallization. More classical tests have been carried out to get recrystallization kinetics in the range 1000-1100°C for different initial microstructures. Simulations of annealing using the mean-field model adapted for tantalum match the experimental evolution of both recrystallized fraction and recrystallized grain size, in either weakly deformed or severely deformed and fragmented microstructures. On the other hand, the model needs to be further adapted for intermediate microstructures, with both a more elaborate description of the initial microstructure and of the nucleation stage of the recrystallized grains. It will then be suitable to predict evolutions of any initial tantalum microstructure during annealing.

**Keywords :** tantalum, static recrystallization, mean-field modeling, mechanical behavior, dislocation density.